



11

12

EUROPEAN PATENT APPLICATION

21

(22)

51

30

43

84

71

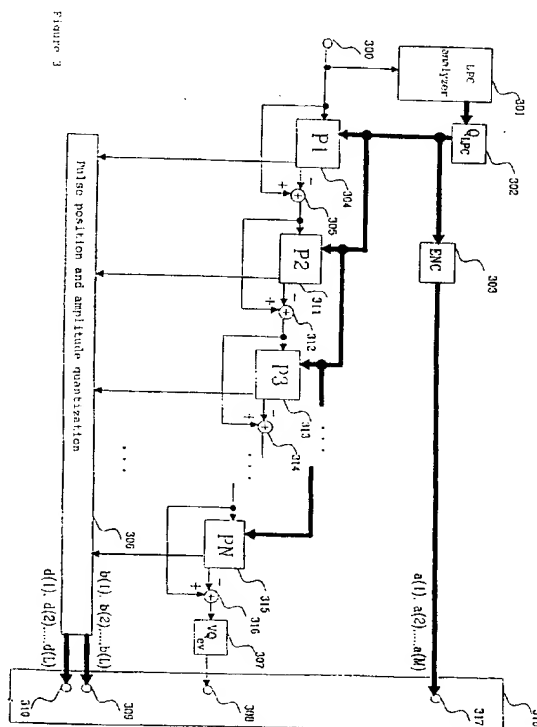
71

72

74

54

57



The invention relates to a method and apparatus for digital coding of speech signals at low transmission rates.

In the last years good results have been obtained with the "analysis through synthesis" method in digital coding of a speech signal at low transmission rates. In encoders based on such analysis-synthesis methods the decoder operation is simulated already in the encoder and the synthesis result provided by each parameter combination is analyzed and the parameters representing the speech signal are selected according to which of the selectable combinations provided the best decoding result compared to the original speech signal. In the analysis-synthesis method the synthesizing parameters to be used are thus determined on the basis of the synthesized speech signal. Such a method is also called a closed system method, because the synthesis result directly controls the selection of the synthesis parameters.

In speech coding closed system search can be applied only to the most critical parameters due to the complexity of the search, e.g. to code the excitation signal in encoders using a linear prediction model. These low transmission rate speech coding methods include Multi-Pulse Excitation Coding (MPEC) and Code Excitation Linear Prediction (CELP). The realization of both the multi-pulse excitation coding and the linear code excitation coding requires an extensive calculation process and causes a high power consumption, which in practice make them difficult to realize and utilize.

With the aid of some simplifications it was recently possible to realize analysis-synthesis methods in real time using digital signal processors, but problems related to the above mentioned calculation load and the power and memory consumption make their extensive use inconvenient and in many applications prevent the use of them. Analysis-synthesis methods are explained for instance in the patent publications US 4,472,832 and US 4,817,157.

For an efficient coding of the excitation signal also linear predictive coding methods based on an open system have been presented, in which a part of the samples are selected directly from the analysis-filtered signal (difference signal) to be transmitted by the decoder. This method typically produces a poorer result than the feed-back method, because in this method the synthesis result is not examined at all, and the excitation sample values are not selected on the basis of the sample signal value combination providing the best synthesized signal, as is made in the above described closed system encoders. In order to obtain a low transmission rate the number of samples must be reduced or selected, and this can be made e.g. by reducing the sampling frequency of the inverse filtered signal. A method of this kind is explained e.g. in the patent publication US 4,752,956.

The problem is to obtain good speech quality us-

ing methods where the excitation signal is selected directly from the difference signal samples. When the excitation is selected only on the basis of the difference signal, and the actual synthesis result is not used to control the formation of the excitation, then the speech signal is easily distorted during coding and its quality is lowered.

Prior art is described below with reference to the enclosed figure 1 showing an embodiment of the prior art solution.

Figure 1 shows the block diagram of a prior art analysis-synthesis coding system of the CELP type. The coding in question is a code excited linear prediction coding. In the encoder the search for the excitation signal through synthesis is realized by testing all possible excitation alternatives contained in a so called code book 100, and by synthesizing in a synthesis filter 102 speech signal frames corresponding to the alternatives (in blocks of about 10 to 30 ms). The synthesized speech signal is compared with the speech signal 103 to be coded in the difference means 104, which generates a signal representing the error. The error signal can further be processed so that in the weighting block 105 some features of the human sense of hearing are taken into account in the error signal. The error calculation block 106 calculates the synthesis result obtained using each possible excitation vector contained in the code book. Thus we obtain information about the quality provided by the use of each tested excitation. The excitation vector providing the minimum error is selected to be transmitted through the control logic 101 to the decoder. To the decoder is transmitted the address of the code book memory position, where the best excitation signal contained in the code book was found.

The excitation signal used in multi-pulse excitation coding is found by a corresponding testing procedure. The procedure tests different pulse positions and amplitudes and synthesizes a speech signal corresponding to them, and further compares the synthesized speech signal with the speech signal to be coded. Contrary to the above mentioned encoder of the CELP type, the MPEC method does not examine the quality of previously formed vectors stored in the code book when the speech signal is synthesized, but the excitation vector is formed by testing different pulse positions one by one. Then we transmit to the decoder the position and the amplitude of single excitation pulses, which were selected to form the excitation.

The present invention aims to provide a method for digital coding of a speech signal, in which the above mentioned disadvantages and problems can be solved. To obtain this the invention is characterized in that the excitation signal is formed with the aid of several coding blocks, whereby in each block i sample values are selected from the signal supplied by the analysis filter K_i in order to be used as partial ex-

citation in the sample selection block, that each coding block generates with the aid of a synthesis filter a speech signal corresponding to the selected excitation, that the operation of the coding blocks is controlled by subtracting the partial excitation obtained in the preceding coding block from the speech signal to be coded before it is supplied for processing in the next coding block, and that the synthesis result obtained in each coding block is used to control the forming of the total excitation.

The present invention is a speech encoder applying linear prediction, in which the signal used as excitation is coded so that a speech signal corresponding to the formed partial excitation is synthesized in connection with the optimization of the excitation samples, whereby the optimization of the total excitation is controlled by the synthesis results of the partial excitations. The speech encoder according to the invention comprises N coding blocks performing the coding. In each coding block a set of difference signal samples to be used as partial excitation are selected, by an algorithm described below, and transmitted to the decoder (analysis step), and with the aid of the selected excitation pulses a speech signal corresponding to them is synthesized in order to be used to control the selection of the total excitation (synthesis step). The method differs from the analysis-synthesis methods in that the speech signal synthesis does not utilize all total excitation alternatives, but it is made for each partial excitation.

Below the invention is described in detail with reference to the enclosed figures, in which

figure 1 shows the block diagram of a prior art analysis-synthesis coding method of CELP type,

figure 2 shows the coding block of the encoder according to the invention,

figure 3 shows an encoder according to the invention,

figure 4 shows a decoder according to the invention,

figure 5 shows an alternative embodiment of the encoder according to the invention.

Figure 1 was described above. The solution according to the invention is described below with reference to figures 2 - 5 showing an embodiment of the solution according to the invention.

Figure 2 shows the coding block of the encoder according to the invention. The method is based on speech signal coding in coding blocks 207, so that within each coding block 207 the speech signal 200 is analysis-filtered 201, partial excitation samples are selected 202, a speech signal is synthesized by the synthesis filter 203. Both the analysis-filtering 201 and the synthesis-filtering 203 are based on a linear filtering model, for which optimal coefficients $a(1), \dots, a(M)$ 206 are calculated from the speech signal $s(n)$ 200.

The analysis section performs on the speech sig-

nal an inverse filter ring, whereby we obtain a difference signal or the optimal excitation signal required for the synthesis of the speech signal in the decoder's synthesis filter. Because the transmission of all sample values of the difference signal would require a high transmission capacity, the method within each speech coding block 207 in the sample selection block 202 reduces the number of samples transmitted to the decoder by selecting in each N speech coding block $K_i (i = 1, 2, \dots, N)$ pulses to be transmitted to the decoder and to be used as a partial excitation 205. The speech signal 204 formed with the aid of the K_i excitation pulses selected within each coding block 207 is synthesized with the synthesis filter 203 in each coding block 207, whereby we can make out the speech signal portion synthesized by each partial excitation 205.

The analysis filter 201 $A(z)$ is of the form:

$$A(z) = 1 - \sum_{j=1}^M a(j)z^{-j}$$

and the synthesis filter 203 $S(z)$ is of the form:

$$S(z) = 1/A(z)$$

The analysis and synthesis filters 201, 203 further can contain also a long term filtering, which models the periodicity of voiced sounds in the speech signal.

According to the invention a speech encoder is formed by coding blocks 207 so that the speech signal 204 synthesized by the coding block 207 and obtained from the synthesis filter 203 of each coding block 207 is subtracted from the input speech signal before it is supplied to the next coding block 207. When the speech signal is coded with the aid of the coding blocks 207 it is possible to divide the coding process in two parts. On one hand the coding process in each speech block comprises an internal algorithm processing directly the difference signal and thus operating directly on the signal supplied by the analysis filter and selecting from it in each coding block 207 i in total K_i excitation pulses to be used as the partial excitation 205. On the other hand the coding comprises synthesizing in the synthesis filter a speech signal 204, which corresponds to the partial excitation 205 and which is used to control the optimization of the total excitation.

Figure 3 shows a speech encoder according to the invention. The speech signal 300 to be coded is LPC analyzed, i.e. in the LPC analyzer 301 a linear model is calculated separately for each speech frame containing L samples and having a length of about 10 to 30 ms. The linear prediction coefficients can be calculated by any method known in the art. The prediction coefficients are quantized in the quantizing block 302 and the quantization result 317 is suitably encoded in the block 303 and then supplied to the multiplexer 318 in order to be further transmitted to the decoder. The quantized coefficients are supplied to each coding block 304, 311, 313, ..., 315 to be used as filter coefficients by their analysis and synthesis filters.

According to the invention the coded speech signal 300 is supplied to each of the N speech coding blocks 304, 311, 313, ..., 315 so that the effect of each partial excitation is subtracted from it in the difference means 305, 312, 314, ..., 316. The excitation pulse positions and amplitudes defined by the partial excitations and obtained from each coding block 304, 311, 313, ..., 315 are then transmitted to the block 306 performing the quantization and encoding to the channel and forming the total excitation's coded representation for the pulse positions $b(1), \dots, b(L)$ 309 and for the amplitudes $d(1), \dots, d(L)$ 310, which then are supplied to the multiplexer 318.

The synthesis filters 203 of all coding blocks use as excitations naturally quantized pulse positions and amplitudes, so that the partial excitation synthesis process in the encoder corresponds to the synthesis process in the decoder, which uses this quantized excitation. For the sake of simplicity the figures do not particularly show how the quantized excitation parameters are supplied to the coding blocks, in which they are used to form the quantized partial excitation transmitted to the synthesis filter.

When the output of the coding block 315 providing the last partial excitation is subtracted from the signal supplied to it from the preceding block we obtain the modeling error of the complete coding the from difference means 316. If desired, it is also possible to quantize and encode this signal in the vector quantizing block 307 and transmit the encoded quantizing result 308 further to the multiplexer 318.

Figure 4 shows a decoder according to the invention. The decoder demultiplexer 409 provides the coding parameters, which are supplied to the decoding blocks 403, 404, 405. An excitation signal is formed and supplied to the synthesis filter 407 in accordance with the pulse positions and amplitudes 402 from the decoding block 405. Optionally it is furthermore possible in the summing means 406 to add to the excitation an additional excitation provided by the vector decoding block 404, if the system also transmits the total prediction error 401 of the encoder modeling. The transmitted prediction coefficients 400 are decoded in block 403 and they are used in the synthesis filter 407. The synthesized speech signal 408 is obtained at the output of the synthesis filter 407.

In the encoder according to the invention we can use the below described algorithm in the search block 202 to select the excitation within each block containing I samples, whereby each coding block i ($i = 1, 2, \dots, N$) selects as partial excitations those K_i samples provided by the analysis filter 201 whose sum of absolute values is highest during the input frame to be coded, in other words the term

$|e(n_1)| + |e(n_2)| + |e(n_3)| + \dots + |e(n_{K_i})|$
is maximized so the distances $|n_1 - n_2|, |n_1 - n_3|, |n_2 - n_3|, \dots$ etc. between the pulses is at least N samples (i.e. the number of coding blocks used in the encod-

er). In the term to be maximized the factor $e(k)$ ($k = 1, 2, \dots, I$) is the output from the analysis filter 201, i.e. the difference signal of the linear modeling. From this sequence containing I samples we thus select by the above mentioned algorithm K_i pulses to be used as the partial excitation. The total excitation is obtained as the sum of the partial excitations.

The algorithm for the search of the excitation pulses can be improved so that a filtering of low-pass type is added to it, whereby the difference signal is filtered before the term to be maximized is calculated. The frequency response of the applied low-pass filter observes the average distribution of the speech into different frequencies.

Figure 5 shows an alternative embodiment of the speech encoder according to the invention. The alternative embodiment differs from the embodiment shown in figure 3 in that more filtering coefficients are calculated for the signal to be coded. In this embodiment each partial excitation is combined in a filter providing a different frequency response, whereby each coding block 504, 508, 512, ... contains analysis and synthesis filters that use coefficients, which are calculated to correspond to the signal supplied to the respective coding block 504, 508, 512.

Thus each partial excitation through a different synthesis filter synthesizes its share of the speech signal. The decoder correspondingly uses N parallel synthesis filters, each of them receiving a corresponding decoded partial excitation, and the synthesized speech signal is obtained as the sum of signals synthesized by the partial excitations.

Through the use of the invention we avoid the extensive computation process and high power consumption required in a closed system. Moreover, this method has an insignificant memory consumption. In an encoder according to the invention we can use comparatively simple excitation selection algorithms like the above described algorithms, and still obtain a high speech quality without the need for methods employing a complex and heavy calculation step for all possible total excitations.

In view of the foregoing description it will be evident to a person skilled in the art that various modifications may be made within the scope of the invention.

The scope of the present disclosure includes any novel feature or combination of features disclosed therein either explicitly or implicitly or any generalisation thereof irrespective of whether or not it relates to the claimed invention or mitigates any or all of the problems addressed by the present invention. The applicant hereby gives notice that new claims may be formulated to such features during the prosecution of this application or any such further application derived therefrom.

Claims

1. Digital speech coding method, in which
 - a set of prediction parameters $a(i)$ corresponding to the input signal are formed in a short term analyzer, the parameters characterizing the short term spectrum of the speech signal in each block, 5
 - in an encoder based on coding blocks an excitation signal is produced, which has only a small number of samples to be transmitted and which enables the synthesis of a coded speech signal corresponding to the original speech signal when the excitation signal is supplied to a synthesis filter operating in accordance with prediction parameters, 10
 - characterized** in that
 - the excitation signal is formed with the aid of several coding blocks (207), whereby in each coding block (207) a sample selection block (202) from the signal provided by the analysis filter (201) selects K_i sample values to be used as the partial excitation (205), 15
 - in each coding block (207) a speech signal (204) corresponding to the selected partial excitation (205) is formed in the synthesis filter (203), 20
 - the operation of the coding blocks (207) is controlled by subtracting the partial excitation's (205) synthesis result (204) obtained in the preceding coding block from the speech signal to be coded before it is supplied for processing in the next coding block, and 25
 - the synthesis result (204) obtained in each coding block (207) is used to control the formation of the total excitation. 30
2. Method according to claim 1, **characterized** in that the pulses (205) used as the excitation are formed in each coding block (207) so that they have the maximum sum of their absolute values, however so that the samples are situated at least at the distance N from each other, whereby N is the number of coding blocks (207) used in the encoder. 35
3. Method according to claim 2, **characterized** in that prior to the selection of the excitation pulses (205) the samples obtained from the analysis filter (201) are filtered with a filter whose frequency response corresponds to the average frequency distribution of the speech. 40
4. Method according to claim 3, **characterized** in that the prediction parameters $a(i)$ are calculated 45
- to replace the original speech signal and to individually correspond to each signal supplied to the different coding blocks (207), from which signal is subtracted the synthesized speech signal (204) produced by the partial excitations (205), whereby each partial excitation (205) is linked to synthesis filters, which possibly have different frequency behaviours.
5. Digital speech encoder based on coding blocks, and containing
 - a short term analyzer, which corresponding to the input signal forms a set of prediction parameters $a(i)$, which in each block are characteristic for the short term spectrum of the speech signal,
 - an encoder producing an excitation signal which contains a small number of samples to be transmitted, and
 - a synthesis filter operating in accordance with the prediction parameters and to which said excitation signal is supplied, whereby a coded speech signal corresponding to the original speech signal is obtained, **characterized** in that it comprises
 - several coding blocks (207), with the aid of which the excitation signal is formed, whereby in each coding block i (207) a sample selection block (202) from the signal provided by the analysis filter (201) selects K_i sample values to be used as the partial excitation (205),
 - whereby each coding block is arranged with the aid of the synthesis filter (203) to form a speech signal (204), which corresponds to the selected partial excitation (205), and
 - whereby the operation of the coding blocks (207) is controlled by subtracting the partial excitation's (205) synthesis result (204) obtained in the preceding coding block from the speech signal to be coded before it is supplied for processing in the next coding block, and
 - the synthesis result (204) obtained in each coding block (207) is used to control the formation of the total excitation. 50
6. Speech encoder according to claim 5, **characterized** in that it comprises
 - an LPC analyzer (301),
 - quantizers (302, 306),
 - a coding block (303),
 - speech coding blocks (304, 311, 313, ..., 315),
 - difference means (305, 312, 314, ..., 316),
 - a vector quantizer (307), and
 - a multiplexer (318), 55

so that

- the LPC analyzer performs an LPC analysis on the speech signal (300) to be coded,
- the quantizing block (302) quantizes the prediction coefficients and supplies the quantizing result (317) to the multiplexer (318) to be further transmitted to the decoder,
- the dequantizer (303) performs a dequantization on the prediction coefficients and supplies the quantized coefficients to each coding block (314, 311, 313, ..., 315) to be used as filter coefficients in their analysis and synthesis filters,
- the speech signal (300) to be coded is supplied to each coding block (304, 311, 313, ..., 315) so that the effect of each partial excitation is subtracted from it in the difference means (305, 312, 314, ..., 316),
- the pulse positions and amplitudes of the excitation pulses defined by the partial excitation and obtained from each coding block (304, 311, 313, 315) are supplied to the quantizer (306),
- the quantizer forms the coded representation of the pulse positions (309) and the pulse amplitudes (310) of the total excitation to be supplied to the multiplexer (318).

7. Speech encoder according to claim 6, **characterized** in that the signal from the difference means (316) is coded in the vector quantization block (307) and further transmitted to the decoder (308).

8. Speech encoder according to claim 7, **characterized** in that the analysis filter (201) $A(z)$ is of the form:

$$A(z) = 1 - \sum_{j=1}^M a(j) z^{-j}$$

and the synthesis filter (203) $S(z)$ is of the form:

$$S(z) = 1 / A(z)$$

and further they (201, 203) can also contain a filtering, which models the periodicity of voiced sounds in the speech signal.

9. Speech encoder according to claim 5, 6, 7 or 8, **characterized** in that several prediction parameters are calculated for the signal to be coded and each partial excitation is combined in a filter realizing a different frequency response so that each coding block (504, 508, 512, ...) has analysis and synthesis filters using coefficients which are calculated to correspond to the signal received by the respective coding block (504, 508, 512, ...), and that the decoder correspondingly uses several parallel synthesis filters, each of which is supplied with the decoded partial excitation corresponding to it, and the synthesized speech signal is obtained as the sum of the sig-

nals synthesized by the partial excitations.

10. Digital decoder, **characterized** in that it comprises

- a demultiplexer (409),
 - a decoding block (403),
 - a vector decoding block (404),
 - a decoding block (405),
 - a summing means (406), and
 - a synthesis filter (407),
- so that
- the demultiplexer (409) of the decoder provides coding parameters, which are transmitted to the decoding blocks (403, 404 and 405),
 - according to the pulse positions and amplitudes (402) from the decoding block (405) an excitation signal is formed, which is transmitted to the synthesis filter (407) of the decoder,
 - the transmitted prediction coefficients (400) are decoded in the decoding block (403) and used in the synthesis filter (407),
 - the synthesized speech signal (408) is obtained at the output of the synthesis filter (407).

11. Decoder according to claim 10, **characterized** in that further an additional excitation provided by the vector decoding block (404) is added to the excitation in the summing means (406).

12. An encoder comprising at least one coding block (207,304,311,313...315; 504,508,512...515) which includes;

filter means (201) for forming excitation signals corresponding to a first signal (200; 300;500) input to the filter means (201),

selection means (202) for selecting from the excitation signals and in accordance with predetermined criteria a set of partial excitation signals (205), and

synthesis means (203) for forming a second signal (204) corresponding to the set of partial excitation signals (205).

13. An encoder according to claim 12, further comprising a subtracting means (305,312,314...316; 513,514,...516) for subtracting the second signal (204) from the first signal (200;300;500) thereby forming a third signal for inputting to a filter means of a second coding block (311,314....315; 508,512...515).

14. A speech encoder utilising linear prediction in which excitation signals are coded such that a speech signal corresponding to partial excitation signals formed from the excitation signals is synthesized in connection with optimising excitation

samples, and whereby total excitation signals are controlled by the speech signals synthesized from the partial excitation signals.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

7

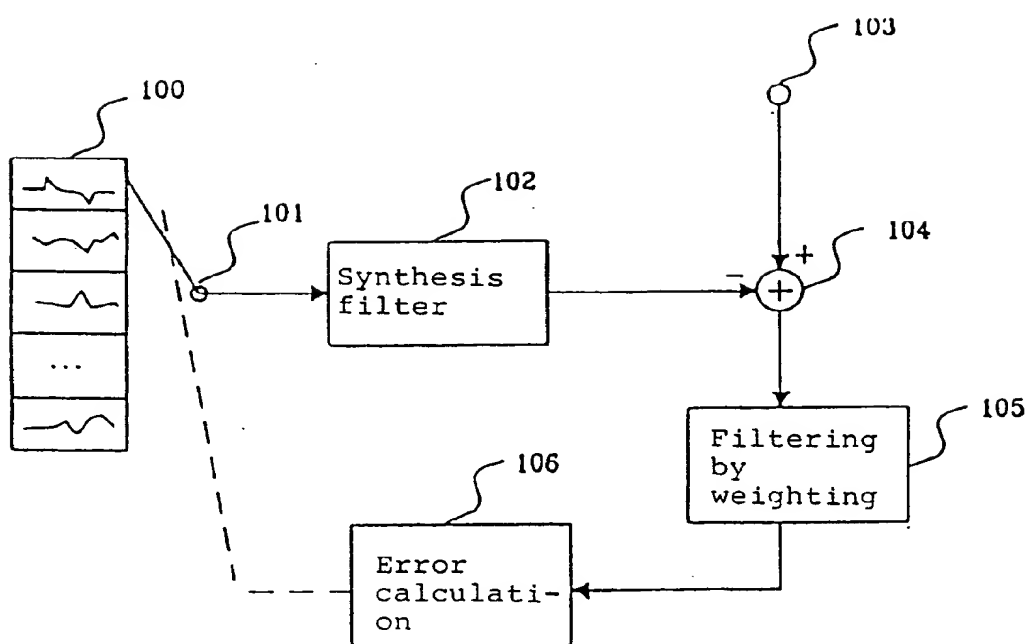


Figure 1

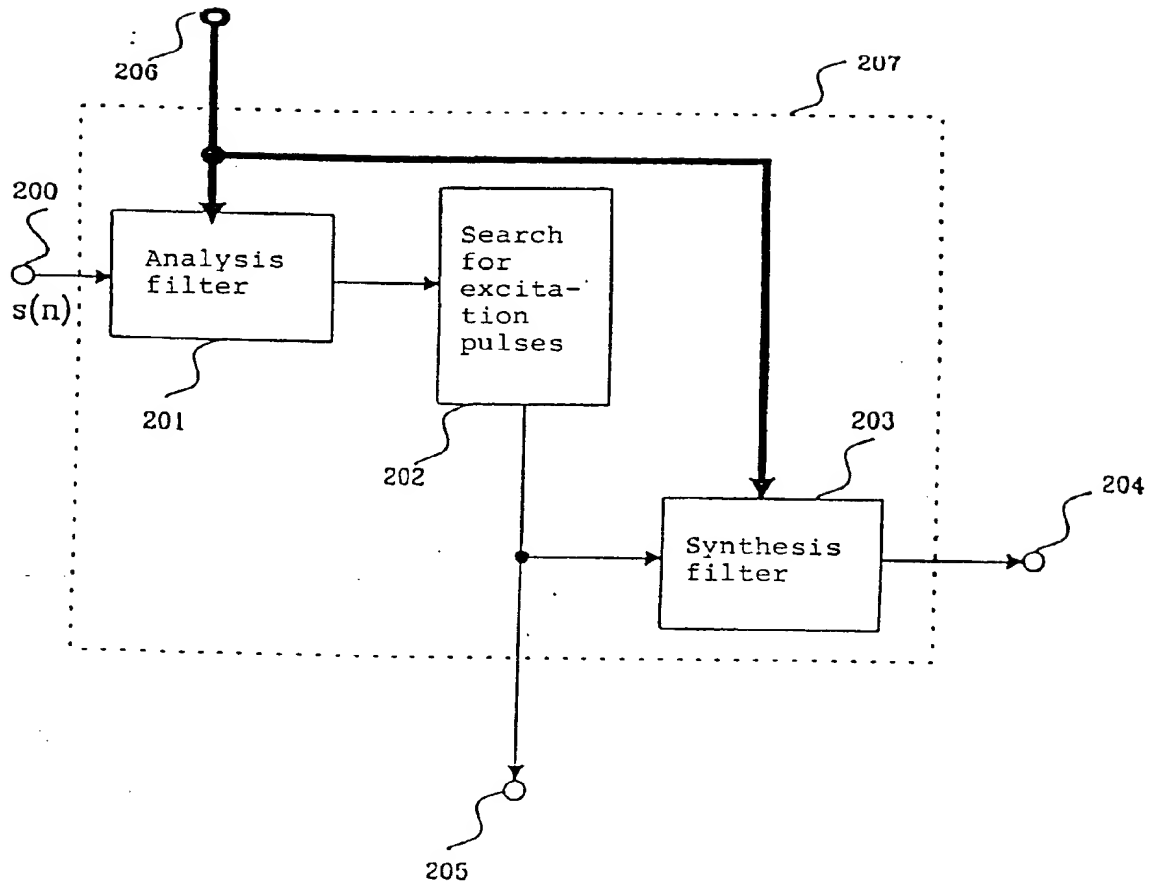


Figure 2

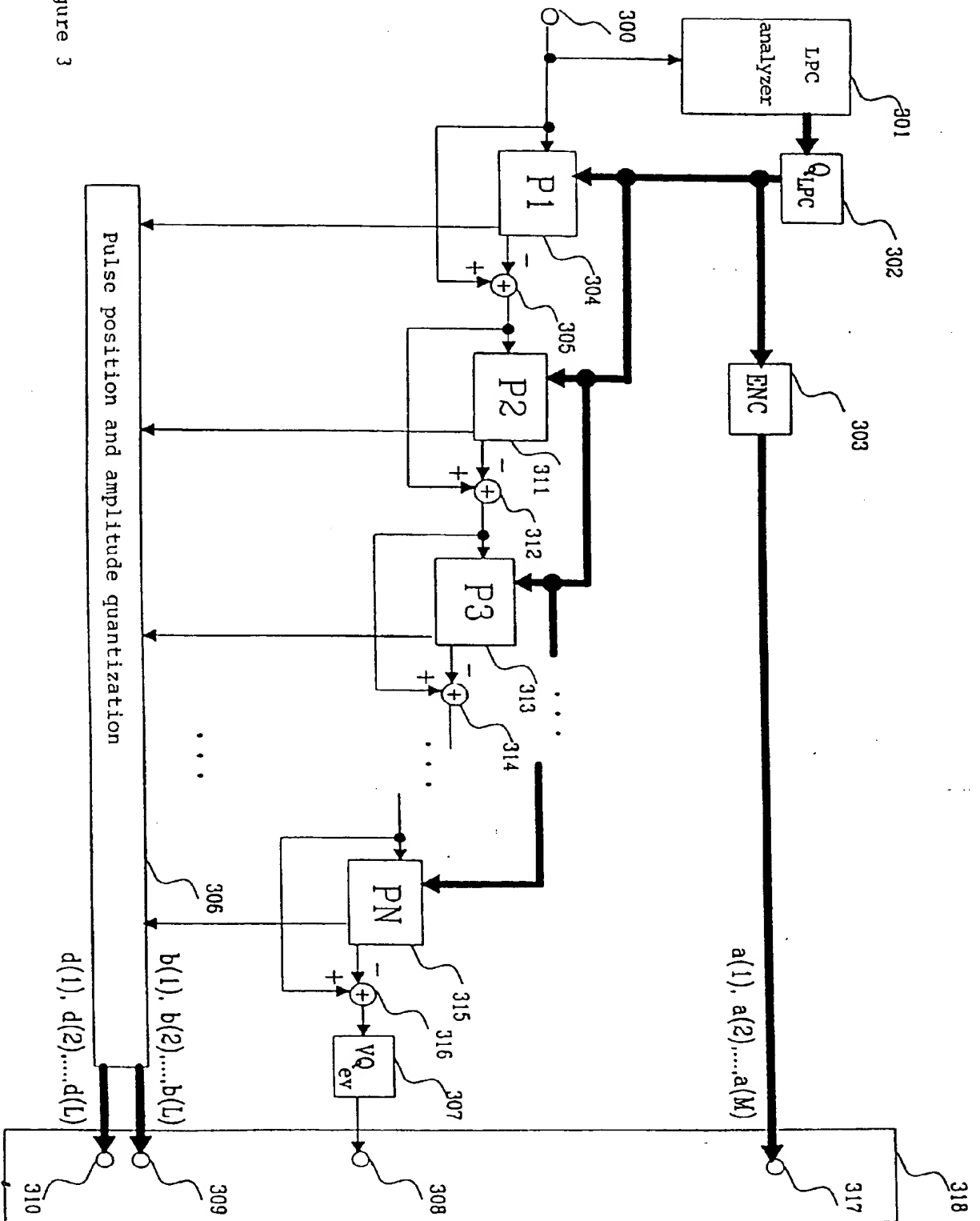


Figure 3

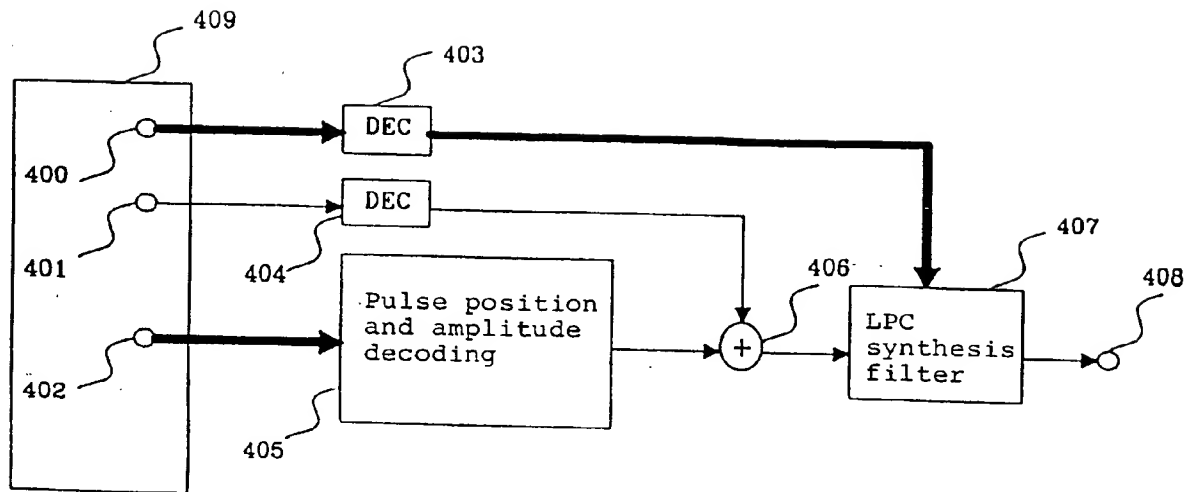


Figure 4

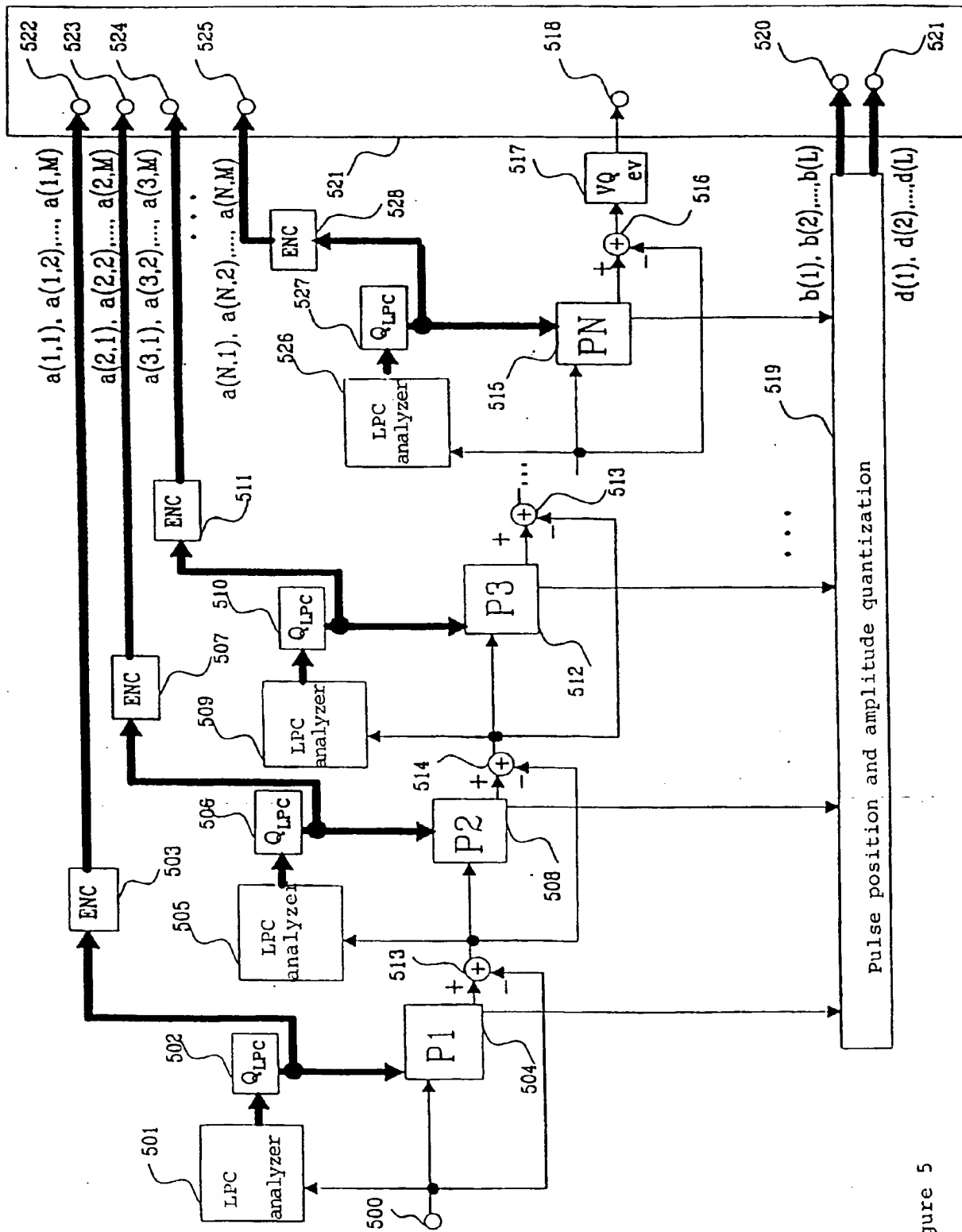


Figure 5



European Patent
Office

EUROPEAN SEARCH REPORT

Application Number

| DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | | EP 93303572.7 |
|---|---|--|--|
| Category | Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages | Relevant to claim | CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int. Cl.5) |
| A | <u>EP - A2 - 0 415 163</u> (CODEX CORP.) * Abstract; fig. 1; claim 1 * -- | 1,5,6, 10,12, 14 | G 10 L 9/14 G 10 L 7/06 G 10 L 9/16 G 10 L 9/18 |
| A | <u>EP - A2 - 0 375 551</u> (KOKUSAI DENSHIN DENWA CO. LTD.) * Fig. 2(a); abstract; claim 1 * -- | 1,5,6, 10,12, 14 | |
| A | <u>EP - A1 - 0 259 950</u> (AMERICAN TELEPHONE AND TELEGRAPH COMP.) * Fig. 1,2; abstract; claim 1 * ---- | 1,5,6, 10,12, 14 | |
| | | | TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int. Cl.5) G 10 L 9/00 G 10 L 7/00 |
| The present search report has been drawn up for all claims | | | |
| Place of search VIENNA | | Date of completion of the search 12-07-1993 | Examiner BERGER |
| CATEGORY OF CITED DOCUMENTS X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date D : document cited in the application L : document cited for other reasons & : member of the same patent family, corresponding document | | | |

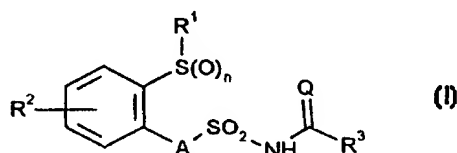
EPO FORM 1503 01.82 (P0401)


 INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

| | | | |
|--|--|---|---|
| (51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : C07D 249/12, 271/06, A01N 47/38, 43/836, C07C 323/67, 317/14, 331/32 | | A1 | (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 97/46540 |
| | | (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: | 11. Dezember 1997 (11.12.97) |
| (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP97/02520 | | strasse 1-3, D-50674 Köln (DE). RIEBEL, Hans-Jochem [DE/DE]; In der Beek 92, D-42113 Wuppertal (DE). ANDRES, Peter [DE/DE]; Feldstrasse 12a, D-40764 Langenfeld (DE). DÖLLINGER, Markus [DE/DE]; Burscheider Strasse 154b, D-51381 Leverkusen (DE). (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE). (81) Bestimmungsstaaten: AU, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, HU, IL, JP, KR, KZ, LK, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SK, TR, UA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> | |
| (22) Internationales Anmeldedatum: 16. Mai 1997 (16.05.97) | | | |
| (30) Prioritätsdaten: 196 21 685.0 30. Mai 1996 (30.05.96) DE | | | |
| (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). | | | |
| (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): SCHALLNER, Otto [DE/DE]; Noldeweg 22, D-40789 Monheim (DE). DREWES, Mark-Wilhelm [DE/DE]; Goethestrasse 38, D-40764 Langenfeld (DE). FINDEISEN, Kurt [DE/DE]; Dünfelder Strasse 28, D-51375 Leverkusen (DE). GESING, Ernst-Rudolf, F. [DE/DE]; Trillser Graben 4, D-40699 Erkrath (DE). JANSSEN, Johannes-Rudolf [DE/DE]; Knipprather Strasse 47, D-40789 Monheim (DE). KIRSTEN, Rolf [DE/DE]; Carl-Langhans-Strasse 27, D-40789 Monheim (DE). KLUTH, Joachim [DE/DE]; Virneburgstrasse 69, D-40764 Langenfeld (DE). MÜLLER, Klaus-Helmut [AT/DE]; Solfstrasse 19, D-40593 Düsseldorf (DE). KÖNIG, Klaus [DE/DE]; Zum Hahnenberg 40, D-51519 Odenthal (DE). PHILIPP, Ulrich [DE/DE]; Hochstaden- | | | |

(54) Title: SUBSTITUTED SULPHONYL AMINO(THIO)CARBONYL COMPOUNDS AND THEIR USE AS HERBICIDES

(54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE SULFONYLAMINO(THIO)CARBONYLVERBINDUNGEN UND IHRE VERWENDUNG ALS HERBIZIDE



(57) Abstract

The invention relates to novel sulphonyl amino(thio)carbonyl compounds of the formula (I) in which n is 0, 1 or 2, A is a single bond, oxygen, sulphur or the group N-R, where R is hydrogen, alkyl, alkenyl, alkynyl or cycloalkyl, Q is oxygen or sulphur, R¹ is hydrogen, formyl or possibly substituted alkyl, alkoxy, alkyl amino, alkoxy amino, dialkyl amino, N-alkoxy-N-alkyl amino, alkyl carbonyl, alkoxy carbonyl, alkyl sulphonyl, alkenyl, alkynyl, cycloalkyl, cycloalkyl carbonyl or cycloalkyl sulphonyl, R² is cyano, halogen or possibly substituted alkyl, alkoxy, alkylthio, alkyl sulphonyl, alkyl sulphonyl, dialkylamino sulphonyl, alkenyl, alkynyl, alkenyloxy or alkynyloxy, and R³ is possibly substituted heterocyclyl with 5 ring members, at least one of which is oxygen, sulphur or nitrogen and one to three others may be nitrogen. Also disclosed are salts of compounds of formula (I), several processes and novel intermediate products for their production and their use as herbicides.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft neue Sulfonylamino(thio)carbonylverbindungen der Formel (I), in welcher n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht, A für eine Einfachbindung, für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung N-R steht, worin R für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht, Q für Sauerstoff oder Schwefel steht, R¹ für Wasserstoff, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylamino, Alkoxyamino, Dialkylamino, N-Alkoxy-N-alkylamino, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylsulfonyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkylsulfonyl steht, R² für Cyano, Halogen oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfonyl, Alkylsulfonyl, Dialkylaminosulfonyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkenyloxy oder Alkynyloxy steht und R³ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Heterocyclyl mit 5 Ringgliedern steht, von denen mindestens eines für Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff steht und ein bis drei weitere Ringglieder für Stickstoff stehen können, sowie Salze von Verbindungen der Formel (I), mehrere Verfahren und neue Zwischenprodukte zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

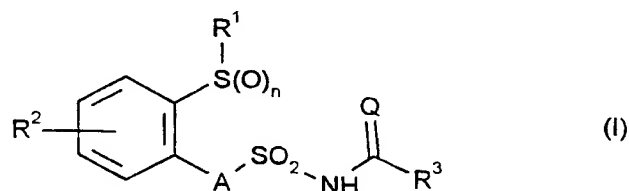
| | | | | | | | |
|----|------------------------------|----|--------------------------------------|----|--|----|-----------------------------------|
| AL | Albanien | ES | Spanien | LS | Lesotho | SI | Slowenien |
| AM | Armenien | FI | Finnland | LT | Litauen | SK | Slowakei |
| AT | Österreich | FR | Frankreich | LU | Luxemburg | SN | Senegal |
| AU | Australien | GA | Gabun | LV | Lettland | SZ | Swasiland |
| AZ | Aserbaidshan | GB | Vereinigtes Königreich | MC | Monaco | TD | Tschad |
| BA | Bosnien-Herzegowina | GE | Georgien | MD | Republik Moldau | TG | Togo |
| BB | Barbados | GH | Ghana | MG | Madagaskar | TJ | Tadschikistan |
| BE | Belgien | GN | Guinea | MK | Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien | TM | Turkmenistan |
| BF | Burkina Faso | GR | Griechenland | | | TR | Türkei |
| BG | Bulgarien | HU | Ungarn | ML | Mali | TT | Trinidad und Tobago |
| BJ | Benin | IE | Irland | MN | Mongolei | UA | Ukraine |
| BR | Brasilien | IL | Israel | MR | Mauretanien | UG | Uganda |
| BY | Belarus | IS | Island | MW | Malawi | US | Vereinigte Staaten von Amerika |
| CA | Kanada | IT | Italien | MX | Mexiko | UZ | Usbekistan |
| CF | Zentralafrikanische Republik | JP | Japan | NE | Niger | VN | Vietnam |
| CG | Kongo | KE | Kenia | NL | Niederlande | YU | Jugoslawien |
| CH | Schweiz | KG | Kirgisistan | NO | Norwegen | ZW | Zimbabwe |
| CI | Côte d'Ivoire | KP | Demokratische Volksrepublik Korea | NZ | Neuseeland | | |
| CM | Kamerun | | | PL | Polen | | |
| CN | China | KR | Republik Korea | PT | Portugal | | |
| CU | Kuba | KZ | Kasachstan | RO | Rumänien | | |
| CZ | Tschechische Republik | LC | St. Lucia | RU | Russische Föderation | | |
| DE | Deutschland | LI | Liechtenstein | SD | Sudan | | |
| DK | Dänemark | LK | Sri Lanka | SE | Schweden | | |
| EE | Estland | LR | Liberia | SG | Singapur | | |

SUBSTITUIERTE SULFONYLAMINO(THIO)CARBONYLVERBINDUNGEN UND IHRE VERWENDUNG ALS HERBIZIDE

Die Erfindung betrifft neue substituierte Sulfonylamino(thio)carbonylverbindungen, mehrere Verfahren und neue Zwischenprodukte zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Herbizide.

Es ist bereits bekannt, daß bestimmte Sulfonylaminocarbonylverbindungen herbizide Eigenschaften aufweisen (vgl. EP 341489, EP 422469, EP 425948, EP 431291, EP 507171, EP 534266, DE 4029753). Die Wirkung dieser Verbindungen ist jedoch nicht in allen Belangen zufriedenstellend.

Es wurden nun die neuen Sulfonylamino(thio)carbonylverbindungen der allgemeinen Formel (I),



in welcher

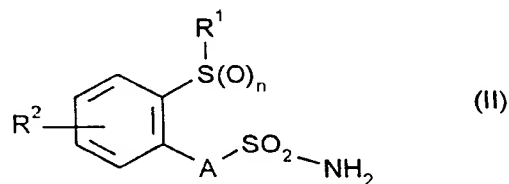
- 15 n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,
- A für eine Einfachbindung, für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung N-R steht, worin R für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht,
- Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,
- 20 R¹ für Wasserstoff, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylamino, Alkoxyamino, Dialkylamino, N-Alkoxy-N-alkyl-amino, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylsulfonyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkylsulfonyl steht,
- 25 R² für Cyano, Halogen oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Dialkylaminosulfonyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkenyloxy oder Alkinyloxy steht und

R^3 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Heterocyclyl mit 5 Ringgliedern steht, von denen mindestens eines für Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff steht und ein bis drei weitere Ringglieder für Stickstoff stehen können,

sowie Salze von Verbindungen der Formel (I) gefunden.

- 5 Man erhält die neuen substituierten Sulfonylamino(thio)carbonylverbindungen der allgemeinen Formel (I), wenn man

(a) Aminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (II)



in welcher

- 10 n , A , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,
mit (Thio)Carbonsäurederivaten der allgemeinen Formel (III)



in welcher

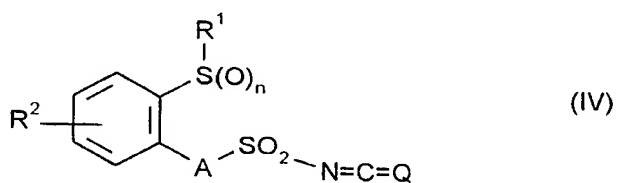
Q und R^3 die oben angegebene Bedeutung haben und

- 15 Z für Halogen, Alkoxy, Aryloxy oder Arylalkoxy steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder wenn man

(b) Sulfonyliso(thio)cyanate der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

n , A , Q , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

mit Heterocyclen der allgemeinen Formel (V)

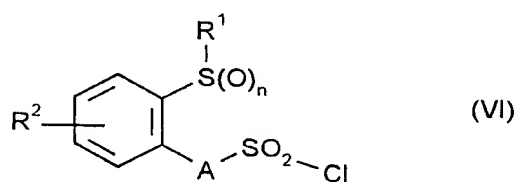


in welcher

R^3 die oben angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

10 oder wenn man
(c) Chlorsulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (VI)



in welcher

n , A , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

15 mit Heterocyclen der allgemeinen Formel (V)



in welcher

R^3 die oben angegebene Bedeutung hat,

und Metall(thio)cyanaten der allgemeinen Formel (VII)



in welcher

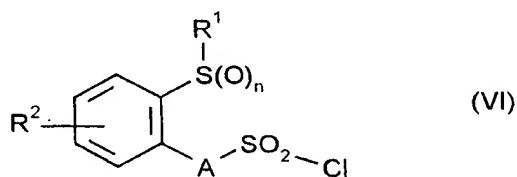
5 Q die oben angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder wenn man

(d) Chlorsulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (VI)

10



in welcher

n , A , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

mit (Thio)Carbonsäureamiden der allgemeinen Formel (VIII)



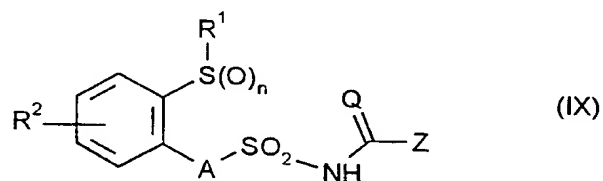
15 in welcher

Q und R^3 die oben angegebene Bedeutung haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder wenn man

(e) Sulfonylamino(thio)carbonylverbindungen der allgemeinen Formel (IX)



in welcher

5 n, A, Q, R¹ und R² die oben angegebene Bedeutung haben und

Z für Halogen, Alkoxy, Aryloxy oder Arylalkoxy steht,

mit Heterocyclen der allgemeinen Formel (V)



in welcher

10 R³ die oben angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder wenn man

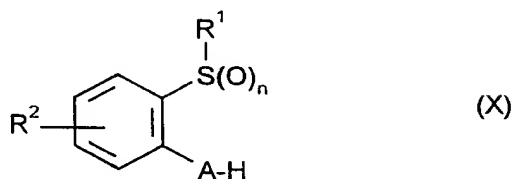
(f) Heterocyclen der allgemeinen Formel (V)



in welcher

R³ die oben angegebene Bedeutung hat,

mit Chlorsulfonyliso(thio)cyanat gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt und die hierbei gebildeten Addukte in situ mit Benzolderivaten der allgemeinen Formel (X)



5 in welcher

n , A , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

10 und gegebenenfalls die nach den Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) oder (f) erhaltenen Verbindungen der Formel (I) nach üblichen Methoden in Salze überführt.

Die neuen substituierten Sulfonylamino(thio)carbonylverbindungen der allgemeinen Formel (I) zeichnen sich durch starke herbizide Wirksamkeit aus.

Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise Verbindungen der Formel (I), in welcher

15 n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

A für eine Einfachbindung, für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung $N-R$ steht, worin R für Wasserstoff, C_1 - C_6 -Alkyl, C_2 - C_6 -Alkenyl, C_2 - C_6 -Alkynyl oder C_3 - C_6 -Cycloalkyl steht,

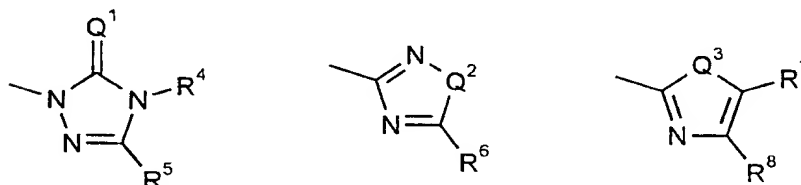
Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

20 R^1 für Wasserstoff, Formyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Phenyl oder C_1 - C_4 -Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylamino, Alkoxyamino, Dialkylamino, N -Alkoxy- N -alkyl-amino, Alkyl-carbonyl, Alkoxy-carbonyl, Alkylsulfonyl, Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils

bis zu 6 Kohlenstoffatomen, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl-carbonyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-sulfonyl steht,

R² für Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Dialkylaminosulfonyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkenyloxy oder Alkynyloxy mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen steht und

R³ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Heterocyclyl der nachstehenden Formeln steht,



worin

Q¹, Q² und Q³ jeweils für Sauerstoff oder Schwefel stehen sowie

R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, für C₂-C₁₀-Alkylidenamino, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C₂-C₆-Alkenyl oder C₂-C₆-Alkynyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Alkylamino oder C₁-C₆-Alkyl-carbonylamino, für C₃-C₆-Alkenyloxy, für Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, C₃-C₆-Cycloalkylamino oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Phenyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl steht,

- R⁵ für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C₂-C₆-Alkenyl oder C₂-C₆-Alkynyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylamino oder C₁-C₆-Alkyl-carbonylamino, für C₃-C₆-Alkenyloxy, C₃-C₆-Alkynyloxy, C₃-C₆-Alkenylthio, C₃-C₆-Alkynylthio, C₃-C₆-Alkenylamino oder C₃-C₆-Alkynylamino, für Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, für jeweils gegebenenfalls durch Methyl und/oder Ethyl substituiertes Aziridino, Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, C₅-C₆-Cycloalkenyl, C₃-C₆-Cycloalkyloxy, C₃-C₆-Cycloalkylthio, C₃-C₆-Cycloalkylamino, C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkoxy, C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkylthio oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkylamino, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, Phenyl-C₁-C₄-alkyl, Phenoxy, Phenyl-C₁-C₄-alkoxy, Phenylthio, Phenyl-C₁-C₄-alkylthio, Phenylamino oder Phenyl-C₁-C₄-alkylamino steht, oder
- R⁴ und R⁵ zusammen für gegebenenfalls verzweigtes Alkandiyl mit 3 bis 11 Kohlenstoffatomen stehen, ferner
- R⁶, R⁷ und R⁸ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkynyloxy, Alkylthio, Alkenylthio, Alkynylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen stehen.

Gegenstand der Erfindung sind weiter vorzugsweise Natrium-, Kalium-, Magnesium-, Calcium-, Ammonium-, C₁-C₄-Alkyl-ammonium-, Di-(C₁-C₄-alkyl)-

ammonium-, Tri-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, Tetra-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium, Tri-(C₁-C₄-alkyl)-sulfonium-, C₅- oder C₆-Cycloalkyl-ammonium- und Di-(C₁-C₂-alkyl)-benzyl-ammonium-Salze von Verbindungen der Formel (I), in welcher n, A, Q, R¹, R² und R³ die oben vorzugsweise angegebenen Bedeutungen haben.

5 Gegenstand der Erfindung sind insbesondere Verbindungen der Formel (I), in welcher

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

10 A für eine Einfachbindung, für Sauerstoff oder für die Gruppierung N-R steht, worin R für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Propenyl, Butenyl, Propinyl, Butinyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl steht,

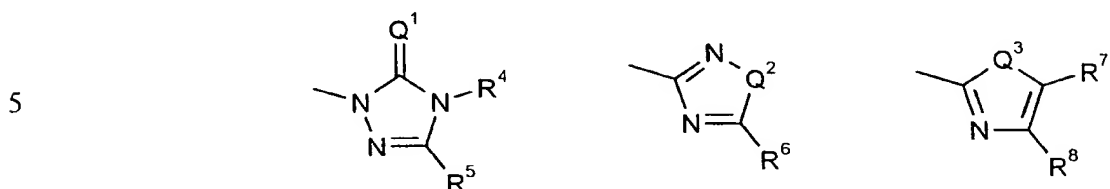
Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

15 R¹ für Wasserstoff, Formyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, Methoxyamino, Ethoxyamino, n- oder i-Propoxyamino, n-, i-, s- oder t-Butoxyamino, Dimethylamino, Diethylamino, N-Methoxy-N-methyl-amino, Acetyl, Propionyl, Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxy-carbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder 20 i-Propylsulfonyl, n-, i-, s- oder t-Butylsulfonyl, Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclopropylcarbonyl oder Cyclopropylsulfonyl steht,

25 R² für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i- oder s-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Di-methylaminosulfonyl oder Diethylaminosulfonyl, für Propenyl, Butenyl, 30

Propinyl, Butinyl, Propenyloxy, Butenyloxy, Propinyloxy oder Butinyloxy steht und

R^3 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Heterocyclyl der nachstehenden Formeln steht



worin

Q^1 , Q^2 und Q^3 jeweils für Sauerstoff oder Schwefel stehen sowie

10 R^4 für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für C_3 - C_8 -Alkylidenamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils
15 gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylamino, Ethylamino, n- oder
20 i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, für Propenyloxy oder Butenyloxy, für Dimethylamino oder Diethylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl und/oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylamino, Cyclobutylamino, Cyclopentylamino, Cyclohexylamino, Cyclopropylmethyl, Cyclobutyl-
methyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl, Trifluormethyl und/oder Methoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl steht,

25 R^5 für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy,

5 n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-
 Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-
 Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, für Propenyloxy, Butenyloxy,
 Propinyloxy, Butinyloxy, Propenylthio, Propadienylthio Butenylthio,
 Propinylthio, Butinylthio, Propenylamino, Butenylamino, Propinylamino
 oder Butinylamino, für Dimethylamino, Diethylamino oder Dipropylamino,
 für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl und/oder Ethyl sub-
 10 stituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclo-
 pentenyl, Cyclohexenyl, Cyclopropyloxy, Cyclobutyloxy, Cyclopentyloxy,
 Cyclohexyloxy, Cyclopropylthio, Cyclobutylthio, Cyclopentylthio, Cyclo-
 hexylthio, Cyclopropylamino, Cyclobutylamino, Cyclopentylamino, Cyclo-
 hexylamino, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl,
 Cyclohexylmethyl, Cyclopropylmethoxy, Cyclobutylmethoxy, Cyclopentyl-
 15 methoxy, Cyclohexylmethoxy, Cyclopropylmethylthio, Cyclobutylmethyl-
 thio, Cyclopentylmethylthio, Cyclohexylmethylthio, Cyclopropylmethyl-
 amino, Cyclobutylmethylamino, Cyclopentylmethylamino oder Cyclohexyl-
 methylamino, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl,
 Trifluormethyl, Methoxy und/oder Methoxycarbonyl substituiertes Phenyl,
 Benzyl, Phenoxy, Benzyloxy, Phenylthio, Benzylthio, Phenylamino oder
 20 Benzylamino steht, oder

R^4 und R^5 zusammen für gegebenenfalls verzweigtes Alkandiyl mit 3 bis 11
 Kohlenstoffatomen stehen, ferner

25 R^6 , R^7 und R^8 gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Cyano,
 Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch
 Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl,
 Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Propenyl,
 Butenyl, Propinyl, Butinyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-
 Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Propenyloxy, Butenyloxy,
 Propinyloxy, Butinyloxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-
 30 Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Propenylthio, Butenyl-
 thio, Propinylthio, Butinylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl,
 Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl, oder für Cyclopropyl
 stehen.

Eine ganz besonders bevorzugte Gruppe erfindungsgemäßer Verbindungen sind die Verbindungen der Formel (I), in welcher

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

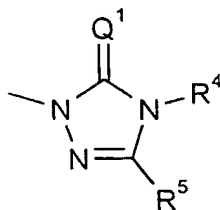
A für eine Einfachbindung steht,

5 Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R¹ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl steht,

10 R² für Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio - jeweils in 6-Position - steht und

R³ für gegebenenfalls substituiertes TriazolinyI der nachstehenden Formel steht



worin

Q¹ für Sauerstoff oder Schwefel steht sowie

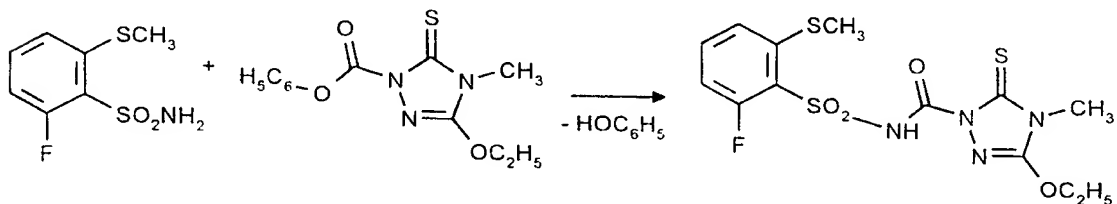
15 R⁴ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, für Propenyl oder Propinyl, für Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, oder für Cyclopropyl steht,

20 R⁵ für Wasserstoff, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Propenyl oder Propinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor,

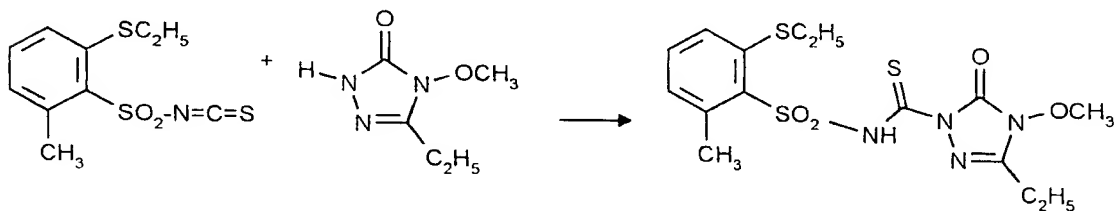
Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, für Propenyloxy oder Cyclopropyl, steht.

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangsstoffe bzw. Zwischenprodukte. Diese Restdefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

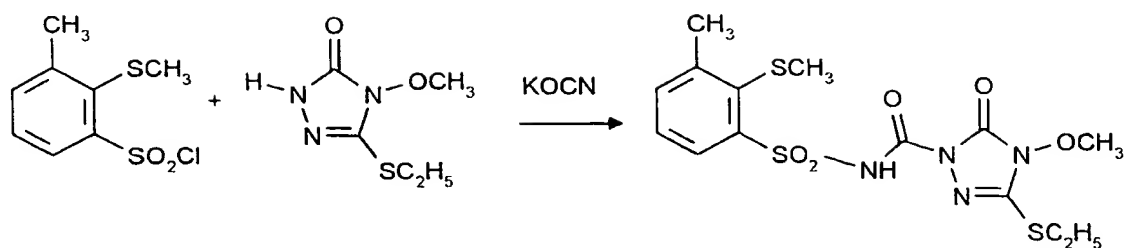
Verwendet man beispielsweise 2-Fluor-6-methylthio-benzolsulfonamid und 5-Ethoxy-4-methyl-2-phenoxycarbonyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-thion als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) durch das folgende Formelschema skizziert werden:



Verwendet man beispielsweise 2-Ethylthio-6-methyl-phenylsulfonyl-isothiocyanat und 5-Ethyl-4-methoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

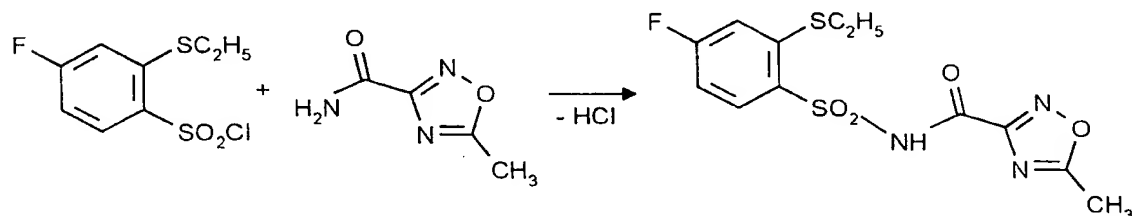


Verwendet man beispielsweise 2-Methylthio-3-methyl-benzolsulfochlorid, 5-Ethylthio-4-methoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und Kaliumcyanat als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (c) durch das folgende Formelschema skizziert werden:



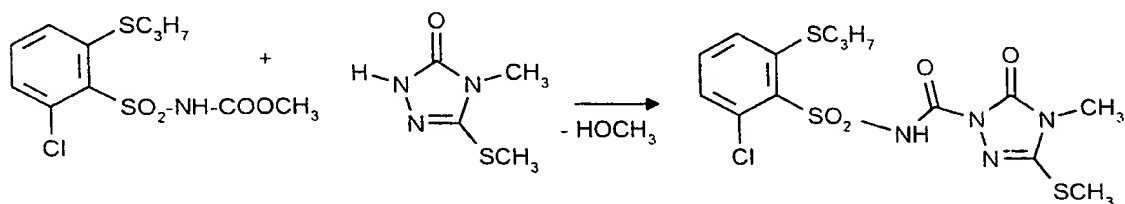
Verwendet man beispielsweise 2-Ethylthio-4-fluor-benzolsulfochlorid und 5-Methyl-1,2,4-oxadiazol-3-carboxamid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (d) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

5



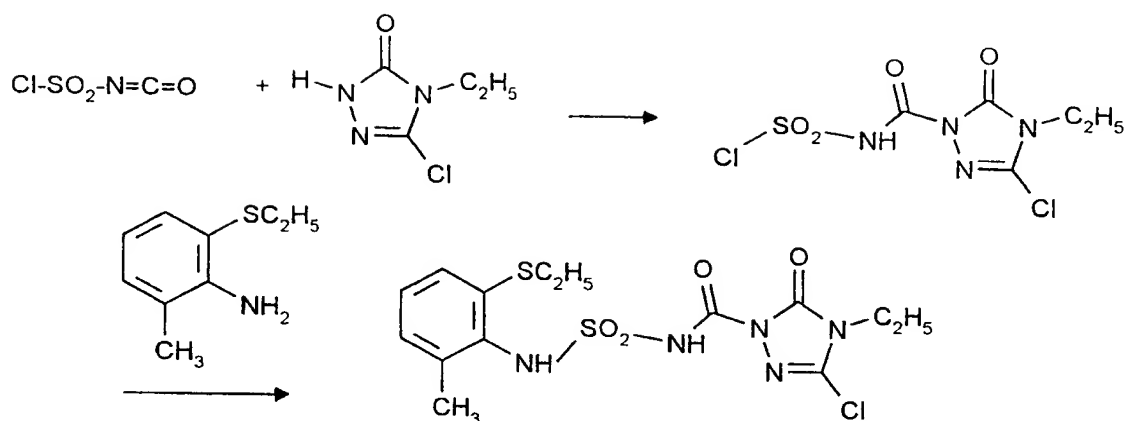
Verwendet man beispielsweise N-(2-Chlor-6-propylthio-phenylsulfonyl)-O-methylurethan und 4-Methyl-5-methylthio-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (e) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

10



Verwendet man beispielsweise 5-Chlor-4-ethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und Chlorsulfonylisocyanat sowie anschließend 2-Ethylthio-6-methyl-anilin als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (f) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

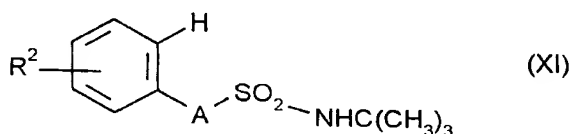
15



Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Aminosulfonylverbindungen sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der Formel (II) haben n, A, R¹ und R² vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n, A, R¹ und R² angegeben wurde.

Die Ausgangsstoffe der Formel (II) sind mit Ausnahme der Verbindung 2,6-Bis-methylthio-benzolsulfonamid (vgl. EP 135332, US 4604131) noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind unter Ausnahme von 2,6-Bis-methylthio-benzolsulfonamid als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Man erhält die neuen Aminosulfonylverbindungen der Formel (II), in welcher n für Null steht, A für eine Einfachbindung steht und R¹ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht, wenn man t-Butylaminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (XI)



in welcher

A und R² die oben angegebene Bedeutung haben,

mit einer metallorganischen Verbindung, wie z.B. Butyllithium in Hexan, gegebenenfalls in Gegenwart eines (weiteren) inerten Verdünnungsmittels, wie z.B.

Tetrahydrofuran, und unter Inertgasatmosphäre, wie z.B. unter Argon, bei Temperaturen zwischen -50°C und +20°C metalliert - d.h. das in der Formel (XI) eingezeichnete Wasserstoffatom durch ein Metallatom ersetzt - dann im gleichen Reaktionsmedium mit Schwefel bei Temperaturen zwischen -30°C und +30°C um-

5 setzt - d.h. das Metallatom durch Schwefel ersetzt - dann im gleichen Reaktionsmedium mit einem Alkylierungsmittel der allgemeinen Formel (XII)

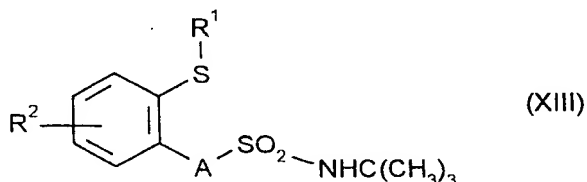


in welcher

10 R^1 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht und

X^1 für Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom oder Iod steht,

bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C umgesetzt und dann - vorzugsweise nach Zwischenisolierung - die so erhaltenen t-Butylaminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (XIII)



in welcher

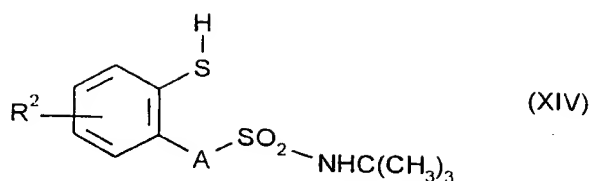
A, R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

mit einer starken Säure, wie z.B. Trifluoressigsäure, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Methylenchlorid, bei Temperaturen zwischen

20 0°C und 50°C umgesetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Man erhält die neuen Verbindungen der Formel (II), in welcher n für Null steht, A für eine Einfachbindung steht und R^1 für H steht, wenn man die t-Butylaminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (XI) wie oben beschrieben nach Metallierung mit Schwefel umgesetzt, dann - gegebenenfalls nach Zwischen-

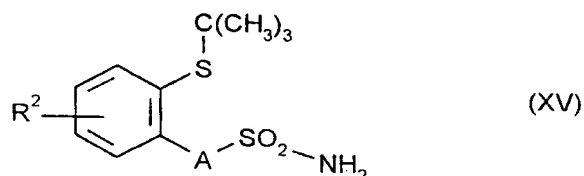
25 isolierung - das hierbei gebildete Produkt der allgemeinen Formel (XIV)



in welcher

A und R² die oben angegebene Bedeutung haben,

- 5 mit einer starken Säure, wie z.B. Trifluoressigsäure, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Methylenchlorid, bei Temperaturen zwischen 0°C und 50°C umgesetzt und das so erhaltene Isomerisierungsprodukt der allgemeinen Formel (XV)

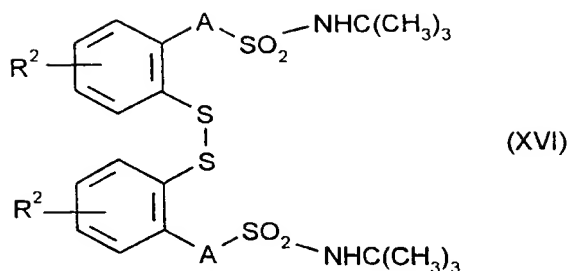


in welcher

- 10 A und R² die oben angegebene Bedeutung haben,

- gegebenenfalls nach Zwischenisolierung - mit einer Lewis-Säure, wie z.B. Bor(III)-bromid, in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Methylenchlorid, bei Temperaturen zwischen 0°C und 50°C umgesetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

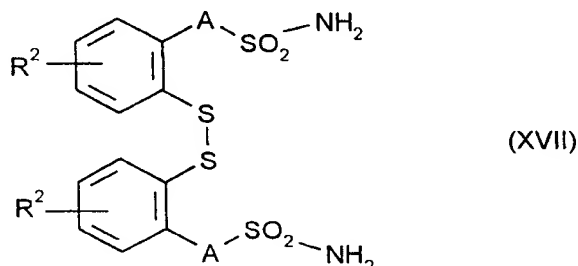
- 15 Man erhält die neuen Verbindungen der Formel (II), in welcher n für Null steht, A für eine Einfachbindung steht und R¹ für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht, wenn man die t-Butylaminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (XI) wie oben beschrieben nach Metallierung mit Schwefel umsetzt, dann - gegebenenfalls nach
- 20 Zwischenisolierung - die hierbei gebildeten Produkte der allgemeinen Formel (XIV) - oben - mit einem geeigneten Oxidationsmittel, wie z.B. Dimethylsulfoxid, bei Temperaturen zwischen 20°C und 120°C umgesetzt, dann - gegebenenfalls nach Zwischenisolierung - die so gebildeten Disulfide der allgemeinen Formel (XVI)



in welcher

A und R² die oben angegebene Bedeutung haben,

- 5 mit einer starken Säure, wie z.B. Trifluoressigsäure, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Methylenchlorid, bei Temperaturen zwischen 0°C und 50°C umgesetzt, dann - gegebenenfalls nach Zwischenisolierung - die hierbei gebildeten Disulfide der allgemeinen Formel (XVII)



in welcher

- 10 A und R² die oben angegebene Bedeutung haben,

- mit einem Reduktionsmittel, wie z.B. Natriumtetrahydridoborat (Natriumborant), gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Methanol, bei Temperaturen zwischen 0°C und 50°C umgesetzt und gegebenenfalls dann die so erhaltenen Verbindungen der Formel (II), in welcher R¹ für Wasserstoff steht, mit
- 15 einem Alkylierungsmittel der allgemeinen Formel (XII)



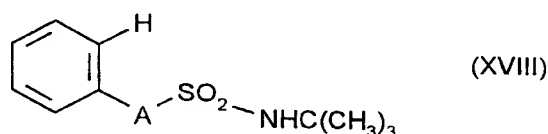
in welcher

R^1 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht und

X^1 für Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom oder Iod steht,

bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C umgesetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Man erhält die neuen Aminosulfonylverbindungen der Formel (II), in welcher A für eine Einfachbindung steht, R^1 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht und R^2 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl - in 6-Position - steht, wenn man t-Butylaminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (XVIII)



in welcher

A die oben angegebene Bedeutung hat,

mit einer metallorganischen Verbindung, wie z.B. Butyllithium in Hexan, gegebenenfalls in Gegenwart eines (weiteren) inerten Verdünnungsmittels, wie z.B. Tetrahydrofuran, und unter Inertgasatmosphäre, wie z.B. unter Argon, bei Temperaturen zwischen -50°C und $+20^\circ\text{C}$ metalliert - d.h. das in der Formel (XVIII) eingezeichnete Wasserstoffatom durch ein Metallatom ersetzt - dann im gleichen Reaktionsmedium mit Schwefel bei Temperaturen zwischen -30°C und $+30^\circ\text{C}$ umgesetzt - d.h. das Metallatom durch Schwefel ersetzt - dann im gleichen Reaktionsmedium mit einem Alkylierungsmittel der allgemeinen Formel (XII)

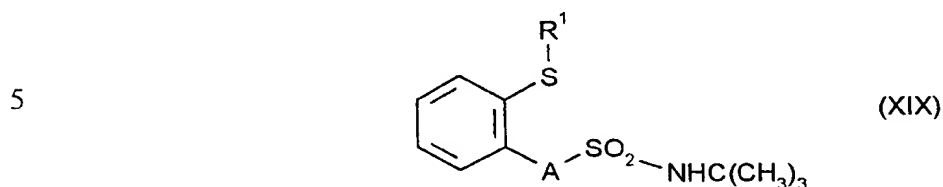


in welcher

R^1 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht und

X^1 für Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom oder Iod steht,

bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C umgesetzt und dann - vorzugsweise nach Zwischenisolierung - die so erhaltenen t-Butylaminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (XIX)



in welcher

A und R^1 die oben angegebene Bedeutung haben,

mit einer metallorganischen Verbindung, wie z.B. Butyllithium in Hexan, gegebenenfalls in Gegenwart eines (weiteren) inerten Verdünnungsmittels, wie z.B. Tetrahydrofuran, und unter Inertgasatmosphäre, wie z.B. unter Argon, bei

10 Temperaturen zwischen -50°C und +20°C metalliert und dann im gleichen Reaktionsmedium mit einem Alkylierungsmittel der allgemeinen Formel (XX)



in welcher

15 R^2 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl steht und

X^2 für Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom oder Iod steht,

bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C umgesetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

20 Die Verbindungen der Formel (II), in welcher n für Null steht, können durch Umsetzung mit geeigneten Oxidationsmitteln, wie z.B. 3-Chlor-perbenzoesäure, auf übliche Weise in entsprechende Verbindungen der Formel (II), in welcher n für 1 oder 2 steht, umgewandelt werden (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Einige der als Vorprodukte benötigten n-Butylaminosulfonylverbindungen der Formel (XIII) - oben - können auch durch Umsetzung von geeigneten Disulfiden der Formel (XVI) - oben - mit geeigneten Alkylierungsmitteln der Formel (XII) - oben - in Gegenwart von Natrium-Hydroxymethansulfinat-Dihydrat und in Gegenwart von Dinatriumhydrogenphosphat sowie in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. N,N-Dimethyl-formamid, erhalten werden (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden (Thio)Carbonsäurederivate sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der Formel (III) haben Q und R³ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für Q und R³ angegeben wurde; Z steht vorzugsweise für Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₄-Alkoxy, Phenoxy oder Benzyloxy, insbesondere für Chlor, Methoxy, Ethoxy oder Phenoxy.

Die Ausgangsstoffe der Formel (III) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. EP 459244, EP 341489, EP 422469, EP 425948, EP 431291, EP 507171, EP 534266).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Sulfonyliso(thio)cyanate sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In der Formel (IV) haben n, A, Q, R¹ und R² vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n, A, Q, R¹ und R² angegeben wurde.

Die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind mit Ausnahme der Verbindung 2,6-Bis-methylthio-phenylsulfonylisocyanat (vgl. EP 135332) noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind unter Ausnahme von 2,6-Bis-methylthio-phenylsulfonylisocyanat als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Man erhält die neuen Sulfonyliso(thio)cyanate der Formel (IV), wenn man Aminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (II) - oben - mit Phosgen bzw. Thiophosgen, gegebenenfalls in Gegenwart eines Alkylisocyanats, wie z.B. Butylisocyanat, gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels, wie z.B.

Diazabicyclo[2.2.2]octan, und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Toluol, Xylol oder Chlorbenzol, bei Temperaturen zwischen 80°C und 150°C umgesetzt und nach Ende der Umsetzung die flüchtigen Komponenten unter vermindertem Druck abdestilliert.

- 5 Die bei den erfindungsgemäßen Verfahren (b), (c), (e) und (f) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Heterocyclen sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In der Formel (V) hat R³ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise
10 bzw. als insbesondere bevorzugt für R³ angegeben wurde.

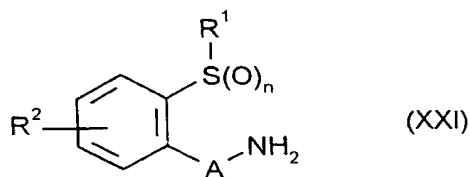
Die Ausgangsstoffe der Formel (V) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. EP 341489, EP 422469, EP 425948, EP 431291, EP 507171, EP 534266).

- 15 Die bei den erfindungsgemäßen Verfahren (c) und (d) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Chlorsulfonylverbindungen sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In der Formel (VI) haben n, A, R¹ und R² vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n, A, R¹ und R²
20 angegeben wurde.

Die Ausgangsstoffe der Formel (VI) sind noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Man erhält die neuen Chlorsulfonylverbindungen der Formel (VI), wenn man entsprechende Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (XXI)

25



in welcher

n, A, R¹ und R² die oben angegebene Bedeutung haben,

mit einem Alkalimetallnitrit, wie z.B. Natriumnitrit, in Gegenwart von Salzsäure bei Temperaturen zwischen -10°C und +10°C umgesetzt und die so erhaltene Diazoniumsalzlösung mit Schwefeldioxid in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Dichlormethan, 1,2-Dichlor-ethan oder Essigsäure, und in Gegenwart eines Katalysators, wie z.B. Kupfer(I)-chlorid und/oder Kupfer(II)-chlorid, bei Temperaturen zwischen -10°C und +50°C umgesetzt.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (d) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden (Thio)Carbonsäureamide sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert. In der Formel (VIII) haben Q und R³ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für Q und R³ angegeben wurde.

Die Ausgangsstoffe der Formel (VIII) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. EP 459244).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (e) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Sulfonylamino(thio)carbonylverbindungen sind durch die Formel (IX) allgemein definiert. In der Formel (IX) haben n, A, Q, R¹ und R² vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n, A, Q, R¹ und R² angegeben wurde; Z steht vorzugsweise für Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₄-Alkoxy, Phenoxy oder Benzyloxy, insbesondere für Chlor, Methoxy, Ethoxy oder Phenoxy.

Die Ausgangsstoffe der Formel (IX) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (f) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Benzolderivate sind durch die Formel (X) allgemein definiert. In der Formel (X) haben n, A, R¹ und R² vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n, A, R¹ und R² angegeben wurde.

Die Ausgangsstoffe der Formel (X) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden.

Die erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) zur Herstellung der neuen Verbindungen der Formel (I) werden vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Als Verdünnungsmittel kommen dabei praktisch alle inerten organischen Lösungsmittel infrage. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische und aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Pentan, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Petrolether, Benzin, Ligroin, Benzol, Toluol, Xylol, Methylenchlorid, Ethylenchlorid, Chloroform, Tetrachlormethan, Chlorbenzol und o-Dichlorbenzol; Ether wie Diethyl- und Dibutylether, Glykoldimethylether und Diglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan; Ketone wie Aceton, Methyl-ethyl-, Methyl-isopropyl- und Methyl-isobutyl-ke-ton; Ester wie Essigssäuremethylester und -ethylester; Nitrile wie z.B. Acetonitril und Propionitril; Amide wie z.B. Dimethylformamid, Dimethylacetamid und N-Methylpyrrolidon sowie Dimethylsulfoxid, Tetramethylensulfon und Hexamethylphosphorsäuretriamid.

Als Reaktionshilfsmittel bzw. als Säureakzeptoren können bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) alle üblicherweise für derartige Umsetzungen verwendbaren Säurebindemittel eingesetzt werden. Vorzugsweise in Frage kommen Alkalimetallhydroxide wie z.B. Natrium- und Kaliumhydroxid, Erdalkalihydroxide wie z.B. Calciumhydroxid, Alkalicarbonat und -alkoholate wie Natrium- und Kaliumcarbonat, Natrium- und Kalium-tert-butylat, ferner basische Stickstoffverbindungen, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Diisobutylamin, Dicyclohexylamin, Ethyldiisopropylamin, Ethyldicyclohexylamin, N,N-Dimethylbenzylamin, N,N-Dimethyl-anilin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 2-Ethyl-, 4-Ethyl- und 5-Ethyl-2-methyl-pyridin, 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), 1,8-Diazabicyclo[5,4,0]-undec-7-en (DBU) und 1,4-Diazabicyclo-[2,2,2]-octan (DABCO).

Die Reaktionstemperaturen können bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20°C und +150°C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 0°C und +100°C.

Die erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

5 Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) werden die jeweils benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Reaktionen werden im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Säureakzeptors durchgeführt, und das Reaktionsgemisch wird mehrere
10 Stunden bei der jeweils erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung erfolgt bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils nach üblichen Methoden (vgl. die Herstellungsbeispiele).

15 Aus den erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) können gegebenenfalls Salze hergestellt werden. Man erhält solche Salze in einfacher Weise nach üblichen Salzbildungsmethoden, beispielsweise durch Lösen oder Dispergieren einer Verbindung der Formel (I) in einem geeigneten Lösungsmittel, wie z.B. Methylenchlorid, Aceton, tert-Butyl-methylether oder Toluol, und Zugabe einer geeigneten Base. Die Salze können dann - gegebenenfalls nach längerem Rühren - durch Einengen oder Absaugen isoliert werden.

20 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defoliant, Desiccant, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten
25 Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium,

Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich zur Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern sowohl im Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren. Sie zeigen starke herbizide Aktivität und ein breites Wirkungsspektrum bei Anwendung auf den Boden und auf oberirdische Pflanzenteile.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-im-

prägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

5 Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum-
erzeugenden Mitteln.

10 Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-
naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlen-
wasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische
15 und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclo-
hexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethyl-
sulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage:

20 z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und syn-
thetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene
und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit
sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie
25 Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben
und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in
Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fett-
säure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolglykolether,
Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dis-
30 pergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere ver-

wendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

- 5 Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

- 10 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

- 15 Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise Anilide, wie z.B. Diflufenican und Propanil; Arylcarbonsäuren, wie z.B. Dichlorpicolin-säure, Dicamba und Picloram; Aryloxyalkansäuren, wie z.B. 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Fluroxypyr, MCPA, MCPP und Triclopyr; Aryloxy-phenoxyalkansäureester, wie z.B. Diclofop-methyl, Fenoxaprop-ethyl, Fluazifop-butyl, Haloxyfop-methyl und Quizalofop-ethyl; Azinone, wie z.B. Chloridazon und
20 Norflurazon; Carbamate, wie z.B. Chlorpropham, Desmedipham, Phenmedipham und Propham; Chloracetanilide, wie z.B. Alachlor, Acetochlor, Butachlor, Metazachlor, Metolachlor, Pretilachlor und Propachlor; Dinitroaniline, wie z.B. Oryzalin, Pendimethalin und Trifluralin; Diphenylether, wie z.B. Acifluorfen, Bifenox, Fluoroglycofen, Fomesafen, Halosafen, Lactofen und Oxyfluorfen; Harnstoffe, wie
25 z.B. Chlortoluron, Diuron, Fluometuron, Isoproturon, Linuron und Methabenzthiazuron; Hydroxylamine, wie z.B. Alloxydim, Clethodim, Cycloxydim, Sethoxydim und Tralkoxydim; Imidazolinone, wie z.B. Imazethapyr, Imazamethabenz, Imazapyr und Imazaquin; Nitrile, wie z.B. Bromoxynil, Dichlobenil und Ioxynil; Oxyacetamide, wie z.B. Mefenacet; Sulfonylharnstoffe, wie z.B. Amidosulfuron, Bensulfuron-methyl, Chlorimuron-ethyl, Chlorsulfuron, Cinosulfuron, Metsulfuron-methyl, Nicosulfuron, Primisulfuron, Pyrazosulfuron-ethyl, Thifensulfuron-methyl, Triasulfuron und Tribenuron-methyl; Thiolcarbamate,
30 wie z.B. Butylate, Cycloate, Diallylate, EPTC, Esprocarb, Molinate, Prosulfocarb,

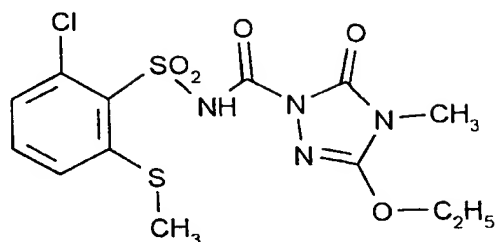
- 5 Thiobencarb und Triallate; Triazine, wie z.B. Atrazin, Cyanazin, Simazin, Simetryne, Terbutryne und Terbutylazin; Triazinone, wie z.B. Hexazinon, Metamitron und Metribuzin; Sonstige, wie z.B. Aminotriazol, Benfuresate, Bentazone, Cinmethylin, Clomazone, Clopyralid, Difenzoquat, Dithiopyr, Ethofumesate, Fluorochloridone, Glufosinate, Glyphosate, Isoxaben, Pyridate, Quinchlorac, Quinmerac, Sulphosate und Tridiphane.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

- 10 Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.
- 15 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auf-
laufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

- 20 Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele:Beispiel 1

5 Eine Lösung von 3,3 g (14 mMol) 2-Chlor-6-methylthio-benzolsulfonamid, 3,7 g
 (14 mMol) 5-Ethoxy-4-methyl-2-phenoxy-carbonyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-
 on und 2,3 g (15,4 mMol) Diazabicyclo[5.4.0]-undecen (DBU) in 30 ml Aceto-
 nitril wird sechs Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Danach wird das
 Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum abgezogen und der ölige Rückstand in 100
 10 ml Methylenchlorid aufgenommen. Die Lösung wird nacheinander mit 1N-
 Salzsäure und gesättigter wässriger Kochsalzlösung gewaschen, über Natriumsulfat
 getrocknet und im Wasserstrahlvakuum vom Lösungsmittel befreit. Man erhält 6,6
 g eines öligen Rückstands, der beim Verrühren mit 30 ml Ethanol kristallisiert.
 Nach Filtration und Trocknung im Vakuum bei 25°C erhält man 3,15 g (55,4 %
 15 der Theorie) 5-Ethoxy-4-methyl-2-(2-chlor-6-methylthio-phenylsulfonyl-amino-
 carbonyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 144°C.

Analog Herstellungsbeispiel 1 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung
 der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in
 der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt
 werden.

20

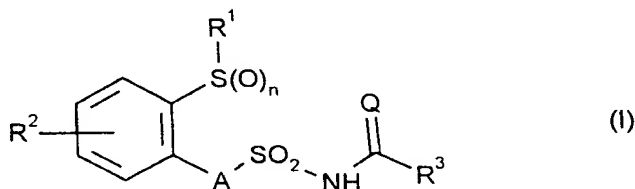


Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

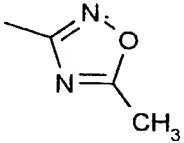
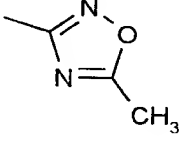
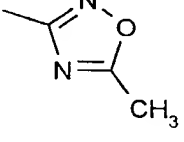
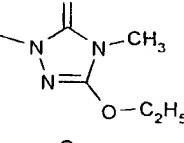
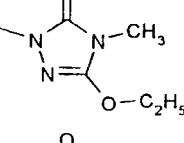
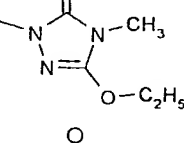
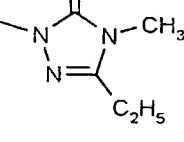
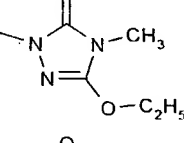
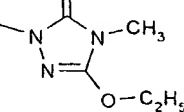
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|----------------------------------|--|---|-----------------------|
| 2 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCH ₃ |  | 89 |
| 3 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCF ₃ |  | 111 (Pyridin-Salz) |
| 4 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCF ₃ |  | 112 |
| 5 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (4-)SO ₂ N(CH ₃) ₂ |  | 189 |
| 6 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCF ₃ |  | 127 |
| 7 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCH ₃ |  | 149 |
| 8 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCH ₃ |  | 140 |
| 9 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)F |  | 139 |
| 10 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)Cl |  | 114 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

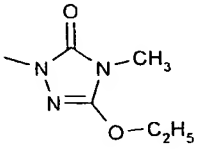
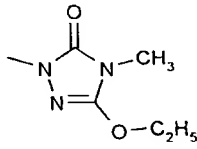
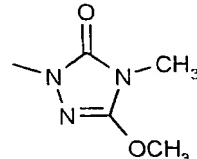
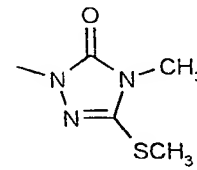
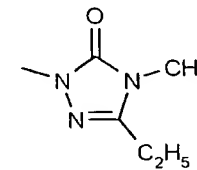
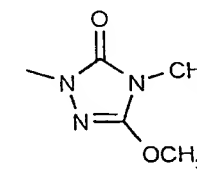
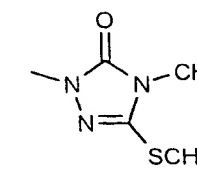
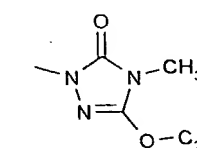
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 11 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CF ₃ |  | 119 |
| 12 | 2 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CF ₃ |  | 142 |
| 13 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CF ₃ |  | 146 |
| 14 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CF ₃ |  | 169 |
| 15 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CF ₃ |  | 135 |
| 16 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)F |  | 130 |
| 17 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)F |  | 120 |
| 18 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)OCH ₃ |  | 145 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

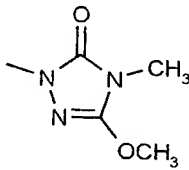
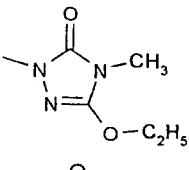
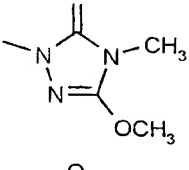
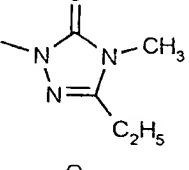
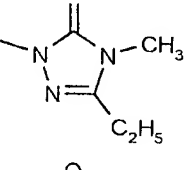
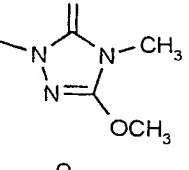
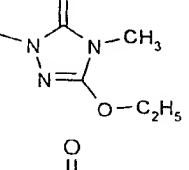
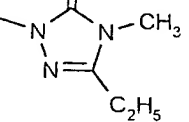
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 19 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)Cl |  | 133 |
| 20 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)OCH ₃ |  | 113 |
| 21 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)OCH ₃ |  | 168 |
| 22 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)OCH ₃ |  | 122 |
| 23 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)OCH ₃ |  | 146 |
| 24 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)OCH ₃ |  | 175 |
| 25 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)OCF ₃ |  | 125 |
| 26 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)CH ₃ |  | 133 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

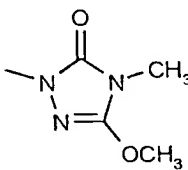
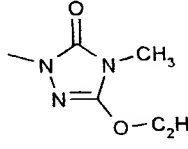
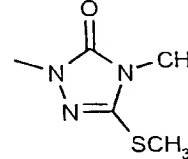
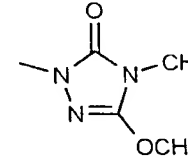
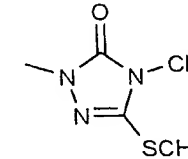
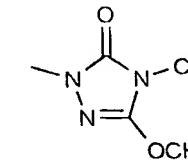
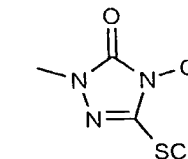
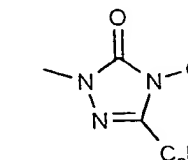
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 27 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)CH ₃ |  | 144 |
| 28 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)CH ₃ |  | 131 |
| 29 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)CH ₃ |  | 121 |
| 30 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCH ₃ |  | 173 |
| 31 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCH ₃ |  | 113 |
| 32 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)OCF ₃ |  | 148 |
| 33 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)OCF ₃ |  | 147 |
| 34 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)OCF ₃ |  | 127 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|-----------------------------------|----------------|----------------------|
| 35 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)OCF ₃ | | 138 |
| 36 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)C ₂ H ₅ | | 141 |
| 37 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)SCH ₃ | | 163 |
| 38 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)SCH ₃ | | 143 |
| 39 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCF ₃ | | 101 |
| 40 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCF ₃ | | 116 |
| 41 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCF ₃ | | 115 |
| 42 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)OCH ₃ | | >230 (Z.) |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|----------------|----------------------|
| 43 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)SC ₂ H ₅ | | 134 |
| 44 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)SC ₂ H ₅ | | 153 |
| 45 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)SC ₂ H ₅ | | 150 |
| 46 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)SC ₂ H ₅ | | 168 |
| 47 | 0 | - | O | -C ₂ H ₄ O- COCF ₃ | (6-)SC ₂ H ₅ | | 162 |
| 48 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)CH ₃ | | 165 |
| 49 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)CH ₃ | | 141 |
| 50 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)SCH ₃ | | 188 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

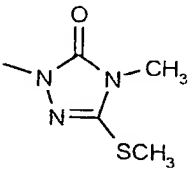
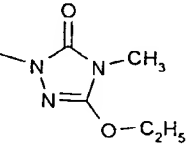
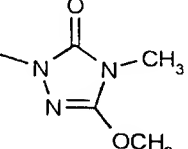
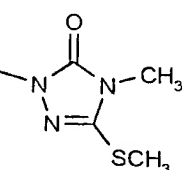
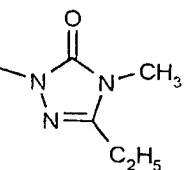
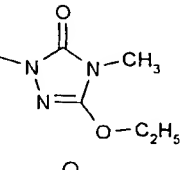
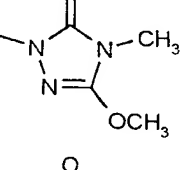
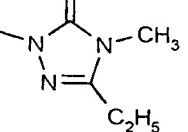
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|-----------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 51 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)SCH ₃ |  | 162 |
| 52 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)SCH ₃ |  | 183 |
| 53 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CH ₃ |  | 157 |
| 54 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CH ₃ |  | 126 |
| 55 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CH ₃ |  | 149 |
| 56 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CH ₃ |  | 154 |
| 57 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCH ₃ |  | 192 |
| 58 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCH ₃ |  | 147 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

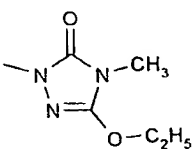
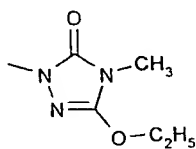
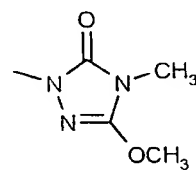
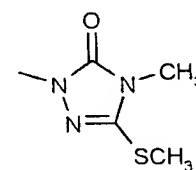
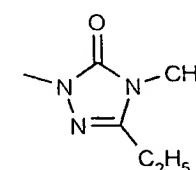
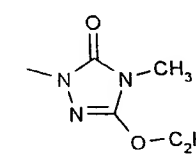
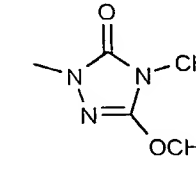
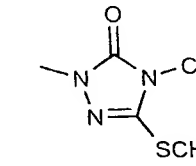
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|-----------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 59 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCH ₃ |  | 171 |
| 60 | 0 | - | O | t-C ₄ H ₉ | (6-)CF ₃ |  | 141 |
| 61 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)CF ₃ |  | 157 |
| 62 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)CF ₃ |  | 173 |
| 63 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)CF ₃ |  | 165 |
| 64 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)CF ₃ |  | 165 |
| 65 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCF ₃ |  | 112 |
| 66 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCF ₃ |  | 125 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

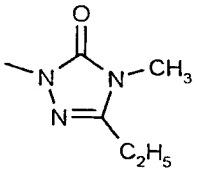
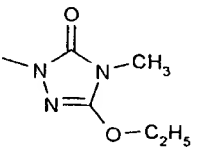
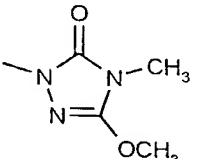
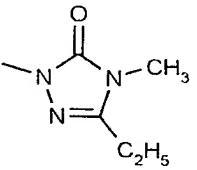
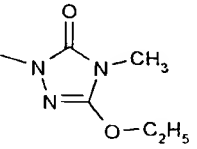
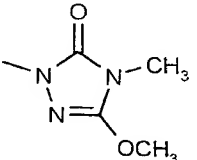
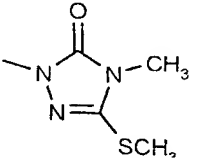
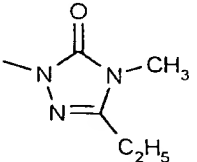
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|-----------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 67 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCF ₃ |  | 95 |
| 68 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCF ₃ |  | 137 |
| 69 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)CF ₃ |  | 151 |
| 70 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)CF ₃ |  | 139 |
| 71 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)CF ₃ |  | 158 |
| 72 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)CF ₃ |  | 150 |
| 73 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)CF ₃ |  | 149 |
| 74 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)CF ₃ |  | 166 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|-------------------------------|----------------|----------------------|
| 75 | 0 | - | O | i-C ₃ H ₇ | (6-)CF ₃ | | 152 |
| 76 | 0 | - | O | | (6-)OCF ₃ | | 149 |
| 77 | 0 | - | O | | (6-)OCF ₃ | | 152 |
| 78 | 0 | - | O | | (6-)OCF ₃ | | 145 |
| 79 | 0 | - | O | | (6-)OCF ₃ | | 138 |
| 80 | 0 | - | O | | (6-)OCF ₃ | | 117 |
| 81 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCF ₃ | | 124 |
| 82 | 0 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)OCH ₃ | | 183 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

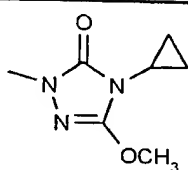
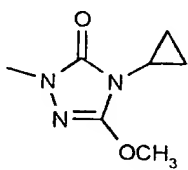
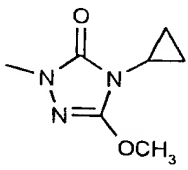
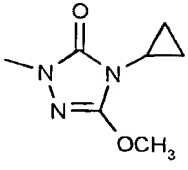
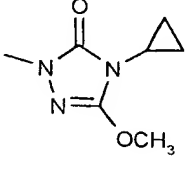
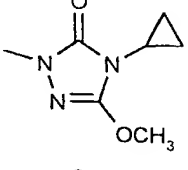
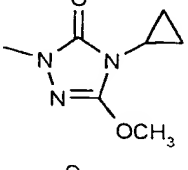
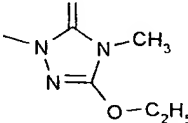
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|-----------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 83 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)Cl |  | 147 |
| 84 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)OCF ₃ |  | 186 |
| 85 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)OCH ₃ |  | 166 |
| 86 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCH ₃ |  | 196 |
| 87 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)CF ₃ |  | 140 |
| 88 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)SCH ₃ |  | 165 |
| 89 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCF ₃ |  | 126 |
| 90 | 1 | - | O | C ₂ H ₅ | (6-)CF ₃ |  | 132 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

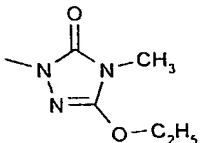
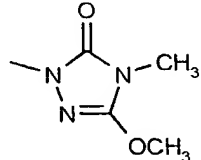
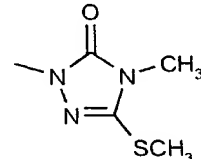
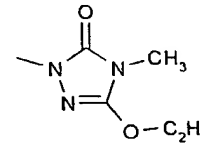
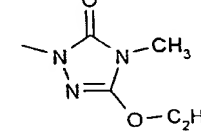
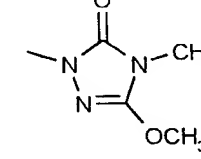
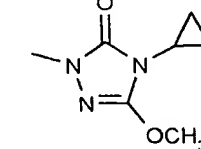
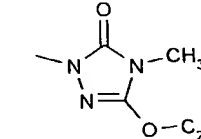
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|-----------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 91 | 0 | - | O | CF ₃ | (6-)OCF ₃ |  | 167 |
| 92 | 0 | - | O | (CH ₂) ₃ F | (6-)CF ₃ |  | 141 |
| 93 | 0 | - | O | (CH ₂) ₃ F | (6-)CF ₃ |  | 134 |
| 94 | 0 | - | O | (CH ₂) ₃ F | (6-)CF ₃ |  | 119 |
| 95 | 0 | - | O | CH ₂ F | (6-)OCF ₃ |  | 119 |
| 96 | 0 | - | O | CH ₂ F | (6-)OCF ₃ |  | 133 |
| 97 | 0 | - | O | CH ₂ F | (6-)OCF ₃ |  | 147 |
| 98 | 0 | - | O | CH ₂ CHF ₂ | (6-)CF ₃ |  | 116 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

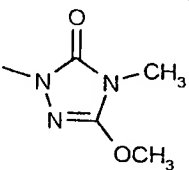
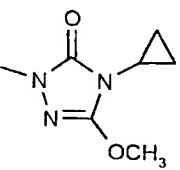
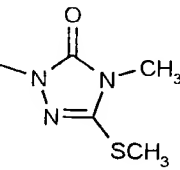
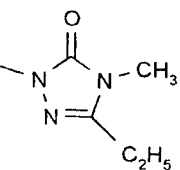
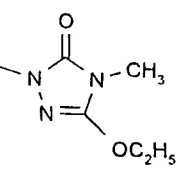
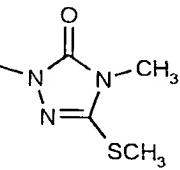
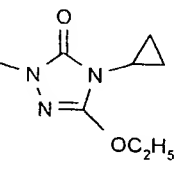
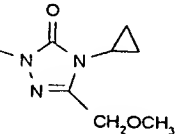
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|----------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 99 | 0 | - | O | CH ₂ CHF ₂ | (6-)CF ₃ |  | (log P = 2,59) |
| 100 | 0 | - | O | CH ₂ CHF ₂ | (6-)CF ₃ |  | (log P = 2,96) |
| 101 | 0 | - | O | CH ₂ CHF ₂ | (6-)CH ₃ |  | (log P = 2,73) |
| 102 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 203 (Z.) |
| 103 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 146 |
| 104 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 208 |
| 105 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 137 |
| 106 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 137 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

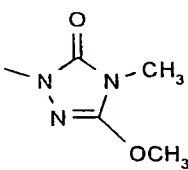
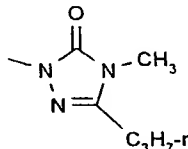
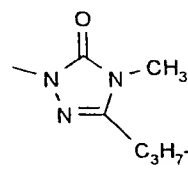
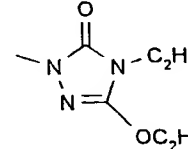
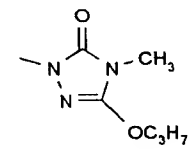
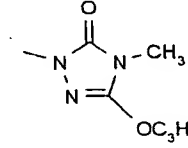
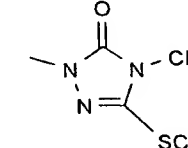
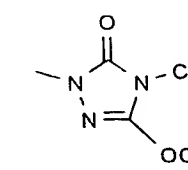
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|----------------------------------|-------------------------------|---|----------------------|
| 107 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 182 (Z.) |
| 108 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 113 |
| 109 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 80 |
| 110 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 114 |
| 111 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 138 |
| 112 | 2 | - | O | N(CH ₃) ₂ | (6-)CH ₃ |  | 161 |
| 113 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)CF ₃ |  | >210 (Z.) |
| 114 | 0 | - | O | CF ₃ | (6-)CF ₃ |  | 169 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

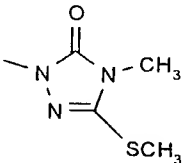
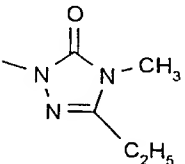
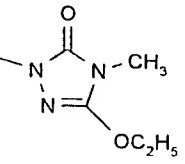
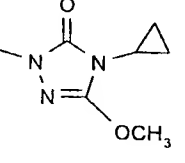
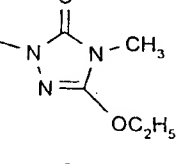
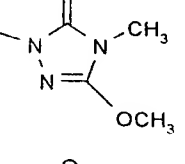
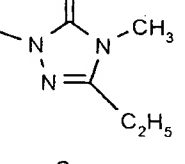
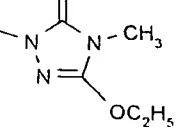
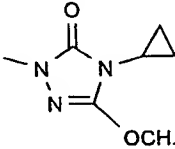
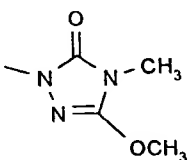
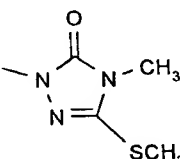
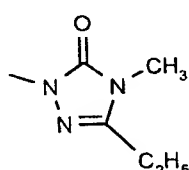
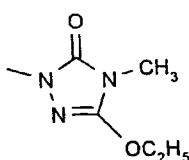
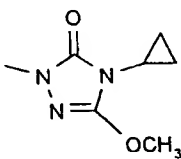
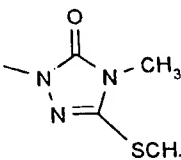
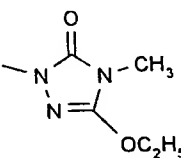
| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|-----------------------------------|--------------------------------------|---|----------------------|
| 115 | 0 | - | O | CF ₃ | (6-)CF ₃ |  | 159 |
| 116 | 0 | - | O | CF ₃ | (6-)CF ₃ |  | 161 |
| 117 | 0 | - | O | CF ₃ | (6-)CF ₃ |  | 175 |
| 118 | 0 | - | O | CF ₃ | (6-)CF ₃ |  | 158 |
| 119 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)C ₂ H ₅ |  | 142 |
| 120 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OC ₃ H _{7-n} |  | 133 |
| 121 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OC ₃ H _{7-n} |  | 131 |
| 122 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OC ₃ H _{7-n} |  | 141 |

Tabelle 1 - Fortsetzung -

| Bsp.- Nr. | n | A | Q | R ¹ | (Position-) R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|--------------|---|---|---|-----------------------------------|--------------------------------------|---|----------------------|
| 123 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OC ₃ H _{7-n} |  | 144 |
| 124 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OC ₃ H _{7-i} |  | 153 |
| 125 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OC ₃ H _{7-i} |  | 152 |
| 126 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OC ₃ H _{7-i} |  | 157 |
| 127 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OC ₃ H _{7-i} |  | 178 |
| 128 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OC ₃ H _{7-i} |  | 142 |
| 129 | 0 | - | O | CH ₂ CH ₂ F | (6-)OCH ₃ |  | 140 |
| 130 | 0 | - | O | CH ₃ | (6-)CF ₃ |  | 216 |

Anmerkungen (zu Tabelle I):

- 1) Die Gruppe, die in den Beispielen 76 - 80 den Rest R^1 bezeichnet, steht für $-\text{CH}_2-\text{C}\equiv\text{CH}$ (Propargyl).
- 2) Z. = "unter Zersetzung".
- 3) $\log P$ = dekadischer Logarithmus des Verteilungskoeffizienten (P) der gelösten Substanz in dem Zweiphasensystem n-Octanol/Wasser, gemessen mittels der HPLC-Methode (bei pH 2; Eluent: Acetonitril mit 1 % H_3PO_4 [vgl. z.B. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften, Nr. L 383A, 35. Jahrgang, Seiten 63 ff., datiert 29.12.1992]).

Die in Tabelle 1 als Beispiel 3 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:

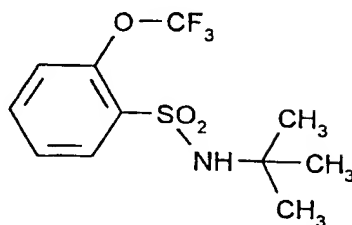
- 5 2,1 g (0,014 Mol) 5-Methyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäure-Natriumsalz werden mit 80 ml Thionylchlorid und 5 Tropfen Dimethylformamid 3 Stunden unter Rückfluß gekocht. Dann destilliert man das überschüssige Thionylchlorid unter vermin-
- 10 dertem Druck ab und nimmt den Rückstand unter Kühlung in 50 ml Pyridin auf. Dann setzt man 4,2 g (0,014 Mol) 2-Ethylmercapto-6-trifluormethoxy-benzol-sulfonsäureamid zu und rührt das Reaktionsgemisch 15 Stunden bei Raumtemperatur. Der pH-Wert wird mit Salzsäure auf 1 gestellt, das Produkt abgesaugt und mit 1N-Salzsäure gewaschen.

Nach dem Trocknen erhält man 5,6 g (81% der Theorie) N-(2-Ethylmercapto-6-trifluormethoxy-phenylsulfonyl)-5-methyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäureamid als Pyridinium-Salz mit dem Schmelzpunkt 111°C.

- 15 Die in Tabelle 1 als Beispiel 4 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:

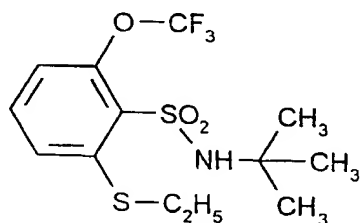
3 g des Pyridiniumsalzes gemäß Beispiel 3 werden 12 Stunden mit 60 ml 10%iger wäßriger Kaliumhydrogencarbonat-Lösung verrührt. Der gebildete Feststoff wird abgesaugt, mit 50 ml 1N-Salzsäure verrührt, abgesaugt, mit Wasser gewaschen und getrocknet.

- 20 Man erhält 2,3 g (76% der Theorie) N-(2-Ethylmercapto-6-trifluormethoxy-phenylsulfonyl)-5-methyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäureamid vom Schmelzpunkt 112°C.

Ausgangsstoffe der Formel (II):Beispiel (II-1)Stufe 1

- 5 Zu einer Lösung von 99,0 g (0,384 Mol) 2-Trifluormethoxy-benzolsulfonsäurechlorid in 400 ml Acetonitril tropft man nacheinander bei 5°C 38,9 g (0,384 Mol) Triethylamin und 28,0 g (0,384 Mol) tert.-Butylamin. Die Reaktionsmischung wird 16 Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt und danach im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Der ölige Rückstand wird in Dichlormethan gelöst, die Lösung
10 mit 2N-Salzsäure gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet und filtriert. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum sorgfältig abdestilliert.

Man erhält 107,6 g (95,3 % der Theorie) 2-Trifluormethoxy-benzolsulfonsäure-tert.-butylamid als kristallinen Rückstand vom Schmelzpunkt 137°C.

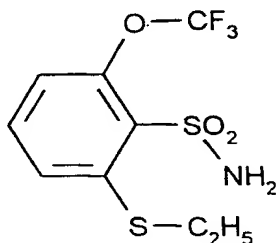
Stufe 2

- 15 30,8 g (0,104 Mol) 2-Trifluormethoxy-benzolsulfonsäure-tert.-butylamid werden unter Argon in 280 ml (wasserfreiem) Tetrahydrofuran gelöst, auf -5°C abgekühlt und mit 156 ml (0,26 Mol) 15%iger n-Butyllithium-Lösung in Hexan versetzt. Nach dreistündigem Rühren bei 0°C bis -5°C werden 3,64 g (0,114 Mol) Schwefel
20 zugesetzt, und es wird weitere drei Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Die Reaktionsmischung wird danach mit 18,0 g (0,115 Mol) Iodethan ver-

setzt, 16 Stunden bei Raumtemperatur gerührt und anschließend mit 560 ml Dichlormethan versetzt. Die Lösung wird mit 2N-Salzsäure gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Das als Rückstand erhaltene Rohprodukt wird mit Petrolether verrührt, abgesaugt und im Vakuum getrocknet.

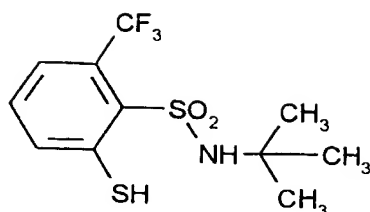
Man erhält 31,4 g (84,6 % der Theorie) 2-Ethylthio-6-trifluormethoxy-benzol-sulfonsäure-tert.-butylamid vom Schmelzpunkt 77°C.

Stufe 3

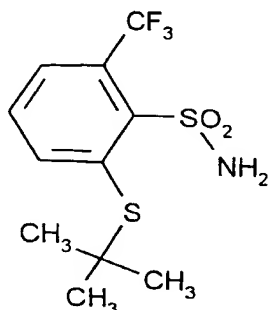


- 10 Zu einer Lösung von 30,4 g (0,085 Mol) 2-Ethylthio-6-trifluormethoxy-benzol-sulfonsäure-tert-butylamid in 160 ml Dichlormethan tropft man bei Raumtemperatur (ca. 20°C) 163 ml (2,13 Mol) Trifluoressigsäure. Das Reaktionsgemisch wird ca. 24 Stunden bei Raumtemperatur gerührt, mit 300 ml Dichlormethan verdünnt, zweimal mit 300 ml Wasser gewaschen, über Magnesiumsulfat
- 15 getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Das als Rückstand erhaltene Rohprodukt wird mit Petrolether verrührt, abgesaugt und im Vakuum getrocknet.

Man erhält 21,7 g (84,7 % der Theorie) 2-Ethylthio-6-trifluormethoxy-benzol-sulfonsäureamid vom Schmelzpunkt 146°C.

Beispiel (II-2)Stufe 1

- 5 163,1 g (0,58 Mol) 2-Trifluormethyl-benzolsulfonsäure-tert.-butylamid werden unter Argon in 1 Liter (wasserfreiem) Tetrahydrofuran gelöst, auf -10°C abgekühlt und mit 884 ml (1,45 Mol) 15%iger n-Butyllithium-Lösung in Hexan versetzt. Nach dreistündigem Rühren bei 0°C bis -5°C werden 30,7 g (0,96 Mol) Schwefel zugesetzt, und es wird weitere 20 Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Die Reaktionsmischung wird danach unter Kühlung auf ca 20°C mit 100 ml 2N-Salzsäure, 1 Liter Wasser und 1 Liter Dichlormethan versetzt. Man stellt die wässrige Phase mit 2N-Salzsäure auf pH 1 und trennt die organische Phase ab. Sie wird mit Wasser gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Das als Rückstand erhaltene Rohprodukt wird mit Petrol-
 10 ether verrührt, abgesaugt und im Vakuum getrocknet.
- 15 Man erhält 160,4 g (84,6 % der Theorie) 2-Mercapto-6-trifluormethyl-benzol-sulfonsäure-tert.-butylamid vom Schmelzpunkt 139°C.

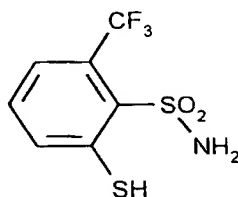
Stufe 2

- 20 Zu einer Lösung von 17,0 g (0,054 Mol) 2-Mercapto-6-trifluormethyl-benzol-sulfonsäure-tert.-butylamid in 100 ml Dichlormethan tropft man bei Raum-

temperatur (ca. 20°C) 104 ml (1,36 Mol) Trifluoressigsäure. Das Reaktionsgemisch wird ca. 24 Stunden bei Raumtemperatur gerührt, mit 300 ml Dichlormethan verdünnt, zweimal mit 200 ml Wasser gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Das als Rückstand erhaltene Rohprodukt wird mit Petrolether verrührt, abgesaugt und im Vakuum getrocknet.

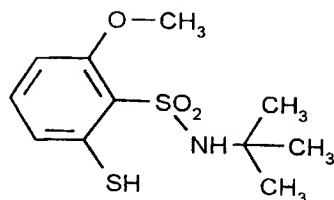
Man erhält 13,8 g (81,2 % der Theorie) 2-tert.-Butylthio-6-trifluormethyl-benzolsulfonsäureamid vom Schmelzpunkt 91°C.

Stufe 3



Zu einer Lösung von 7,3 g (0,023 Mol) 2-tert.-Butylthio-6-trifluormethyl-benzolsulfonsäure-tert-butylamid in 80 ml Dichlormethan tropft man bei Raumtemperatur (ca. 20°C) 23,3 ml (0,023 Mol) 1M-Bortribromid-Lösung in Dichlormethan. Das Reaktionsgemisch wird 4 Stunden bei Raumtemperatur gerührt, mit 100 ml Dichlormethan verdünnt, zweimal mit 100 ml Wasser gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet und filtriert. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum sorgfältig abdestilliert.

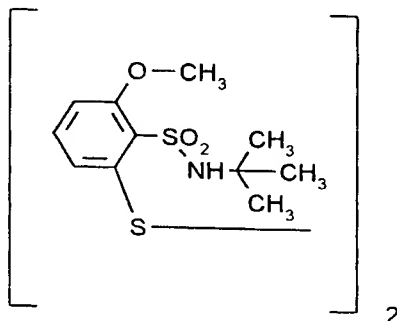
Man erhält 5,3 g (88,7 % der Theorie) 2-Mercapto-6-trifluormethyl-benzolsulfonsäureamid vom Schmelzpunkt 155°C.

Beispiel (II-3)Stufe 1

108 g (0,444 Mol) 2-Methoxy-benzolsulfonsäure-tert.-butylamid werden unter Argon in 759 ml (wasserfreiem) Tetrahydrofuran gelöst, auf -10°C abgekühlt und mit 678 ml (1,11 Mol) 15%iger n-Butyllithium-Lösung in Hexan versetzt. Nach dreistündigem Rühren bei 0°C bis -5°C werden 23,4 g (0,73 Mol) Schwefel zugesetzt, und die Mischung wird weitere 20 Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Die Reaktionsmischung wird danach unter Kühlung auf ca 20°C mit 2N-Salzsäure auf pH 1 gestellt. Der ausgefallene Feststoff wird durch Absaugen isoliert, mit Wasser gewaschen und im Wasserstrahlvakuum bei 50°C getrocknet.

Man erhält 72 g (59 % der Theorie) 2-Methoxy-6-mercapto-benzolsulfonsäure-tert.-butylamid vom Schmelzpunkt 210°C.

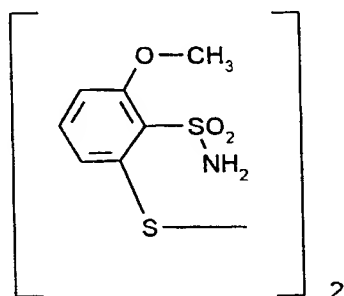
Das Filtrat wird mit 1 Liter Wasser und 1,5 Liter Dichlormethan versetzt, die organische Phase abgetrennt, mit Wasser gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum vom Lösungsmittel befreit. Man erhält weitere 35,5 g (29 % der Theorie) 2-Methoxy-6-mercapto-benzolsulfonsäure-tert.-butylamid.

Stufe 2

- 70 g (0,255 Mol) 2-Methoxy-6-mercapto-benzolsulfonsäure-tert.-butylamid werden in 180 ml Dimethylsulfoxid suspendiert und 22 Stunden auf 90°C erwärmt. Nach dem Abkühlen wird die Suspension auf ca. 1 Liter Wasser ausgetragen. Der ausgefallene Feststoff wird durch Absaugen isoliert, mit Wasser gewaschen und im Wasserstrahlvakuum bei 60°C getrocknet.

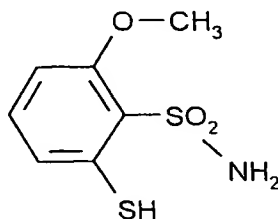
Man erhält 67,1 g (98 % der Theorie) Bis-(2-tert.-butylsulfamoyl-3-methoxy-phenyl)-disulfid vom Schmelzpunkt 275°C.

Stufe 3



- 10 Zu einer Suspension von 20,4 g (0,037 Mol) Bis-(2-tert.-butylsulfamoyl-3-methoxy-phenyl)-disulfid in 70 ml Dichlormethan tropft man bei Raumtemperatur (ca. 20°C) 71 ml (0,93 Mol) Trifluoressigsäure. Das Reaktionsgemisch wird ca. 23 Stunden bei Raumtemperatur gerührt, abgesaugt, mit Dichlormethan gewaschen und im Vakuum bei 60°C getrocknet.
- 15 Man erhält 16,0 g (81 % der Theorie) Bis-(3-methoxy-2-sulfamoyl-phenyl)-disulfid vom Schmelzpunkt 263°C.

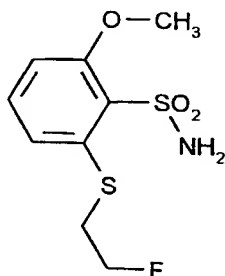
Stufe 4



Zu einer Suspension von 19,2 g (0,044 Mol) Bis-(3-methoxy-2-sulfamoyl-phenyl)-disulfid in 180 ml Methanol gibt man portionsweise unter Stickstoff 12,7 g (0,334 Mol) festes Natriumborhydrid. Nach beendeter Zugabe rührt man 24 Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) und versetzt die Reaktionsmischung tropfenweise mit ca 100 ml 1N-Salzsäure. Der größte Teil des Methanols wird im Wasserstrahlvakuum abgezogen, der feste Rückstand mit 0,5N-Salzsäure verrührt, abgesaugt und im Vakuum bei 60°C getrocknet.

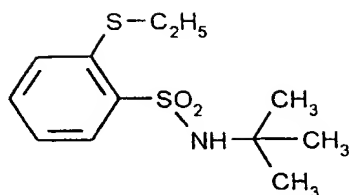
Man erhält 13,8 g (72 % der Theorie) 2-Methoxy-6-mercapto-benzolsulfonamid vom Schmelzpunkt 166°C.

10 Stufe 5

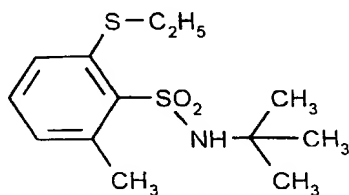


Eine Lösung von 7,5 g (34 mMol) 2-Methoxy-6-mercapto-benzolsulfonamid in 70 ml (wasserfreiem) Acetonitril wird mit 9,45 g (68,5 mMol) (wasserfreiem) Kaliumcarbonat versetzt und die Mischung wird 2 Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Danach gibt man tropfenweise 4,93 g (37,7 mMol) 1-Brom-2-fluor-ethan dazu und rührt weitere 24 Stunden bei Raumtemperatur. Das Reaktionsgemisch wird mit 150 ml Dichlormethan verdünnt, mit 1N-Salzsäure gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet und filtriert. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum sorgfältig abdestilliert.

20 Man erhält 8,6 g (95 % der Theorie) 2-(2-Fluor-ethylthio)-6-methoxy-benzolsulfonamid vom Schmelzpunkt 127°C.

Beispiel (II-4)Stufe 1

- 30 g (0,14 Mol) Benzolsulfonsäure-N-tert.-butylamid werden unter Argon in 400
5 ml (wasserfreiem) Tetrahydrofuran gelöst, auf -5°C abgekühlt und mit 210 ml
(0,35 Mol) 15%iger n-Butyllithium-Lösung in Hexan versetzt. Nach dreistündigem
Rühren bei 0°C bis -5°C werden 4,9 g (0,153 Mol) Schwefel zugesetzt, und die
Mischung wird weitere drei Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Die
10 Reaktionsmischung wird danach mit 24,2 g (0,155 Mol) Iodethan versetzt, 24
Stunden bei Raumtemperatur gerührt und anschließend mit 800 ml Dichlormethan
versetzt. Die Lösung wird mit 1N-Salzsäure gewaschen, über Magnesiumsulfat ge-
trocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Das als Rückstand erhaltene Roh-
produkt wird mit Petrolether verrührt, abgesaugt und im Vakuum bei 40°C
getrocknet.
- 15 Man erhält 34,1 g (89 % der Theorie) 2-Ethylthio-benzolsulfonsäure-N-tert.-butyl-
amid vom Schmelzpunkt 88°C.

Stufe 2

- 25 g (0,092 Mol) 2-Ethylthio-benzolsulfonsäure-tert.-butylamid werden unter
20 Stickstoff in 200 ml (wasserfreiem) Tetrahydrofuran gelöst, auf -10°C abgekühlt
und mit 140 ml (0,23 Mol) 15%iger n-Butyllithium-Lösung in Hexan versetzt.
Nach dreistündigem Rühren bei -10°C bis -15°C wird die Reaktionsmischung mit
15,6 g (0,11 Mol) Iodmethan versetzt. Man rührt weitere zwei Stunden bei -15°C

bis -20°C und läßt dann die Temperatur langsam auf Raumtemperatur (ca. 20°C) ansteigen. Nach 24 Stunden wird mit 800 ml Dichlormethan versetzt, die Lösung mit 2N-Salzsäure gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Das als Rückstand erhaltene Rohprodukt wird mit Petrol-
 5 ether verrührt, abgesaugt und im Vakuum bei 40°C getrocknet.

Man erhält 20,1 g (76,5 % der Theorie) 2-Ethylthio-6-methyl-benzolsulfonsäure-tert.-butylamid vom Schmelzpunkt 94°C.

Analog zu den Beispielen (II-1) bis (II-4) können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 2 aufgeführten Verbindungen der Formel (II) hergestellt
 10 werden.

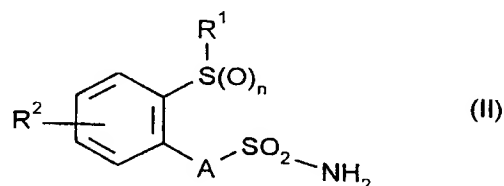


Tabelle 2: Beispiele für die Verbindungen der Formel (II)

| | Bsp.-Nr. | n | A | R ¹ | (Position-) R ² | Schmelzpunkt (°C) |
|----|----------|---|---|---------------------------------|-----------------------------------|-------------------|
| 15 | II-5 | 0 | - | CH ₃ | (6-)C ₂ H ₅ | |
| | II-6 | 0 | - | C ₂ H ₅ | (6-)OCH ₃ | 154 |
| | II-7 | 0 | - | C ₂ H ₅ | (6-)F | 132 |
| | II-8 | 0 | - | C ₂ H ₅ | (6-)Cl | 124 |
| | II-9 | 0 | - | C ₂ H ₅ | (6-)CF ₃ | 120 |
| 20 | II-10 | 1 | - | C ₂ H ₅ | (6-)CF ₃ | 112 |
| | II-11 | 2 | - | C ₂ H ₅ | (6-)CF ₃ | 193 |
| | II-12 | 0 | - | i-C ₃ H ₇ | (6-)OCH ₃ | 128 |
| | II-13 | 0 | - | i-C ₃ H ₇ | (6-)Cl | 83 |
| | II-14 | 0 | - | CH ₃ | (6-)Cl | 127 |
| 25 | II-15 | 0 | - | CH ₃ | (6-)OCH ₃ | 155 |
| | II-16 | 0 | - | CH ₃ | (6-)OCF ₃ | 160 |
| | II-17 | 0 | - | i-C ₃ H ₇ | (6-)OCF ₃ | 135 |

Tabelle 2 - Fortsetzung -

| | Bsp.-Nr. | n | A | R ¹ | (Position-) R ² | Schmelzpunkt (°C) |
|----|----------|---|---|--|------------------------------------|-------------------|
| 5 | II-18 | 0 | - | i-C ₃ H ₇ | (6-)CH ₃ | 87 |
| | II-19 | 0 | - | i-C ₃ H ₇ | (6-)C ₂ H ₅ | 146 |
| | II-20 | 0 | - | i-C ₃ H ₇ | (6-)SCH ₃ | 129 |
| | II-21 | 0 | - | C ₂ H ₅ | (6-)SC ₂ H ₅ | 105 |
| | II-22 | 0 | - | C ₂ H ₄ OCOCF ₃ | (6-)OCH ₃ | 135 |
| | II-23 | 0 | - | CH ₃ | (6-)SCH ₃ | 120 |
| | II-24 | 0 | - | C ₂ H ₅ | (6-)CH ₃ | 192 |
| | II-25 | 0 | - | CH ₃ | (6-)CH ₃ | 164 |
| 10 | II-26 | 0 | - | CH ₃ | (6-)CF ₃ | 130 |
| | II-27 | 0 | - | H | (6-)OCF ₃ | 146 |
| | II-28 | 0 | - | C ₂ H ₄ F | (6-)OCF ₃ | |
| | II-29 | 0 | - | C ₂ H ₄ F | (6-)CF ₃ | 131 |
| | II-30 | 0 | - | i-C ₃ H ₇ | (6-)CF ₃ | 138 |
| 15 | II-31 | 0 | - | CH ₂ C≡CH | (6-)OCF ₃ | 105 |
| | II-32 | 0 | - | CF ₃ | (6-)OCF ₃ | 85 |
| | II-33 | 0 | - | C ₂ H ₃ F ₂ | (6-)CF ₃ | 110 |
| | II-34 | 0 | - | C ₃ H ₆ F | (6-)CF ₃ | 112 |
| | II-35 | 0 | - | CH ₂ F | (6-)OCF ₃ | 163 |
| 20 | II-36 | 0 | - | CF ₃ | (6-)CF ₃ | |
| | II-37 | 0 | - | CF ₃ | (6-)OCH ₃ | |

Anwendungsbeispiele:Beispiel A

Pre-emergence-Test

- 5 Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton
 Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät. Nach ca. 24 Stunden wird der Boden mit der Wirkstoffzubereitung gespritzt, so daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1 000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.
- 15 Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

- | | | |
|-------|---|--|
| 0 % | = | keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle) |
| 100 % | = | totale Vernichtung |

- 20 In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 1, 6, 7, 8, 11, 13, 14, 20, 21, 22, 24, 25, 30, 32, 33, 34, 35, 40, 41, 57, 59, 60, 61, 62 und 63 bei teilweise guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Mais, Weizen, Baumwolle und Soja, sehr starke Wirkung gegen Unkräuter (vgl. Tabellen A-1 bis A-5).
- 25 "ai." = Wirkstoff ("active ingredient").

Tabelle A-1: Pre-emergence-Test/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbsp.-Nr. | g ai./ha | Mais | Alope- curus | Lolium | Sorghum | Amaran- thus | Cheno- podium | Matri- caria | Sola- num |
|---|----------|------|-----------------|--------|---------|-----------------|------------------|-----------------|--------------|
| 6 | 125 | 0 | 100 | 100 | 80 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 7 | 125 | 0 | 100 | 100 | 90 | 100 | 100 | 70 | 100 |
| 8 | 125 | 0 | 100 | 80 | - | 100 | 100 | - | 60 |
| 11 | 125 | 10 | 100 | 90 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 13 | 125 | 0 | 90 | 90 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 14 | 125 | 0 | 100 | - | 90 | 70 | 100 | 100 | 100 |
| 1 | 125 | 0 | 95 | 70 | 90 | 90 | 60 | 70 | 100 |
| 20 | 60 | 0 | 100 | 95 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 21 | 60 | 20 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 90 | 100 |
| 22 | 125 | 30 | 100 | 100 | 80 | 100 | - | 60 | 100 |
| 30 | 60 | 0 | 100 | 100 | 95 | 95 | 90 | 95 | 95 |
| 32 | 30 | 5 | 90 | 100 | 90 | 100 | 100 | 90 | 95 |
| 33 | 125 | 10 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 34 | 60 | 20 | 100 | 80 | 90 | 90 | 90 | - | 95 |
| 57 | 125 | - | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | - | - |
| 59 | 125 | - | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 62 | 60 | 10 | 100 | 100 | 90 | 100 | 100 | - | 100 |
| 63 | 60 | 0 | 100 | 70 | 100 | 100 | 100 | - | 100 |

Tabelle A-2: Pre-emergence/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbsp.-Nr. | g ai./ha | Wei- zen | Alope- curus | Lolium | Sorghum | Amaran- thus | Cheno- podium | Sola- num | Vero- nica |
|---|----------|-------------|-----------------|--------|---------|-----------------|------------------|--------------|---------------|
| 35 | 60 | 10 | 100 | 95 | 90 | 100 | 100 | 95 | 100 |

Tabelle A-3: Pre-emergence/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbsp.-Nr. | g ai./ha | Mais | Baum- wolle | Alope- curus | Sorghum | Amaran- thus | Cheno- podium | Matri- caria | Viola |
|---|----------|------|----------------|-----------------|---------|-----------------|------------------|-----------------|-------|
| 24 | 125 | 0 | 0 | 95 | 70 | 100 | 100 | 70 | 100 |

Tabelle A-4: Pre-emergence/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbsp.-Nr. | g ai./ha | Mais | Soja | Alope- curus | Lolium | Sorghum | Amaran- thus | Cheno- podium | Matri- caria | Sola- num |
|---|-------------|------|------|-----------------|--------|---------|-----------------|------------------|-----------------|--------------|
| 25 | 125 | 0 | 20 | 100 | 70 | 80 | 95 | 100 | 95 | 100 |
| 40 | 125 | 5 | 20 | 100 | 95 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 41 | 125 | 10 | 20 | 100 | 80 | 90 | 100 | 100 | 100 | 100 |

Tabelle A-5: Pre-emergence/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbsp.-Nr. | g ai./ha | Wei- zen | Baum- wolle | Alope- curus | Bromus | Echino- chloa | Amaran- thus | Cheno- podium | Vero- nica |
|---|----------|-------------|----------------|-----------------|--------|------------------|-----------------|------------------|---------------|
| 60 | 125 | 0 | 20 | 90 | 95 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 61 | 60 | 30 | 0 | 95 | 100 | 100 | 100 | 100 | 80 |

Beispiel B

Post-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.

Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

- 15 Es bedeuten:

| | | |
|-------|---|--|
| 0 % | = | keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle) |
| 100 % | = | totale Vernichtung |

- 20 In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 6, 7, 11, 13, 20, 21, 22, 24, 30, 34, 39, 40, 43, 44, 46, 48, 49, 50, 51, 52, 53, 55, 56 und 59 bei teilweise guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Weizen, sehr starke Wirkung gegen Unkräuter (vgl. Tabellen B-1 bis B-4); "ai." = Wirkstoff.

Tabelle B-1: Post-emergence-Test/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbsp.-Nr. | g ai./ha | Wei- zen | Alope- curus | Lolium | Sorghum | Ipomoea | Solanum | Stellaria | Xanthium |
|---|----------|-------------|-----------------|--------|---------|---------|---------|-----------|----------|
| 20 | 60 | 20 | 95 | 90 | 100 | 95 | 100 | 100 | 95 |
| 21 | 60 | - | 100 | 95 | 100 | 90 | 100 | 100 | - |
| 22 | 60 | - | 90 | 90 | 95 | 80 | 80 | 90 | - |
| 24 | 60 | 15 | 90 | 60 | 90 | 90 | 95 | 95 | - |
| 30 | 125 | - | 95 | 90 | 100 | 90 | 100 | 100 | 100 |
| 34 | 60 | 20 | 90 | 70 | 100 | 80 | 95 | 80 | 95 |
| 6 | 60 | 5 | 60 | 50 | 70 | 90 | 95 | 95 | 95 |
| 7 | 60 | 10 | 95 | 95 | 95 | 95 | 95 | 100 | - |
| 52 | 60 | - | 90 | 60 | 100 | 90 | 95 | 95 | 95 |

Tabelle B-2: Post-emergence/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbsp.-Nr. | g ai./ha | Weizen | Sorghum | Ipomoea | Solanum | Stellaria | Xanthium |
|---|----------|--------|---------|---------|---------|-----------|----------|
| 11 | 60 | 0 | - | 90 | 70 | 90 | 90 |
| 13 | 60 | 0 | 80 | 90 | 95 | 95 | - |
| 39 | 60 | 20 | 80 | 80 | 95 | 90 | 95 |
| 40 | 60 | 20 | 80 | 90 | 95 | 95 | 100 |
| 43 | 60 | 20 | 70 | 95 | 95 | 90 | 100 |
| 44 | 60 | 10 | 70 | 95 | 95 | 80 | 100 |
| 46 | 60 | - | 70 | 95 | 95 | 95 | 100 |
| 48 | 60 | 5 | 100 | 90 | 90 | 60 | 95 |
| 49 | 60 | 20 | 90 | 90 | 90 | 70 | 95 |
| 53 | 125 | 20 | 95 | 95 | 59 | 90 | 100 |

Tabelle B-3: Post-emergence/Gewächshaus

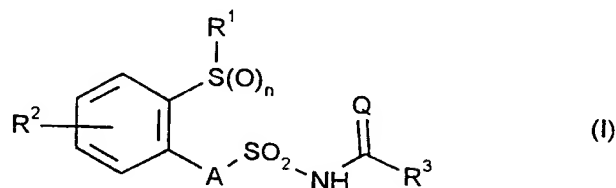
| Wirkstoff gemäß Herstellungsbsp.-Nr. | g ai./ha | Weizen | Amaranthus | Matricaria | Solanum | Xanthium |
|---|----------|--------|------------|------------|---------|----------|
| 55 | 60 | 20 | 95 | 95 | 90 | 100 |
| 56 | 125 | 10 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 51 | 125 | 20 | 95 | 95 | 95 | 95 |

Tabelle B-4: Post-emergence/Gewächshaus

| Wirkstoff gemäß Herstellungsbsp.-Nr. | g ai./ha | Echinochloa | Sorghum | Amaranthus | Solanum | Xanthium |
|---|----------|-------------|---------|------------|---------|----------|
| 59 | 60 | 100 | 100 | 100 | 90 | 95 |
| 49 | 60 | - | 90 | 95 | 90 | 95 |
| 50 | 60 | 80 | 95 | 95 | 95 | 95 |

Patentansprüche

1. Sulfonylamino(thio)carbonylverbindungen der allgemeinen Formel (I),



in welcher

- 5 n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,
- A für eine Einfachbindung, für Sauerstoff, Schwefel oder die
 Gruppierung N-R steht, worin R für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl,
 Alkinyl oder Cycloalkyl steht,
- Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,
- 10 R¹ für Wasserstoff, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls sub-
 stituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylamino, Alkoxyamino, Dialkylamino,
 N-Alkoxy-N-alkyl-amino, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkyl-
 sulfonyl, Alkenyl, Alkinyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder
 Cycloalkylsulfonyl steht,
- 15 R² für Cyano, Halogen oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes
 Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Dialkyl-
 aminosulfonyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkenyloxy oder Alkinyloxy steht
 und
- 20 R³ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Heterocycl mit 5 Ring-
 gliedern steht, von denen mindestens eines für Sauerstoff, Schwefel
 oder Stickstoff steht und ein bis drei weitere Ringglieder für Stick-
 stoff stehen können,

sowie Salze von Verbindungen der Formel (I).

2. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß darin

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

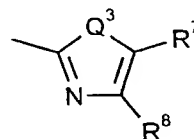
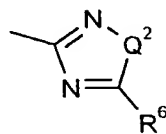
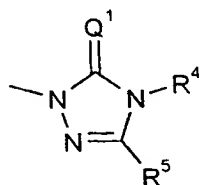
A für eine Einfachbindung, für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung N-R steht, worin R für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₂-C₆-Alkenyl, C₂-C₆-Alkynyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl steht,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R¹ für Wasserstoff, Formyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Phenyl oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylamino, Alkoxyamino, Dialkylamino, N-Alkoxy-N-alkyl-amino, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylsulfonyl, Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl-carbonyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-sulfonyl steht,

R² für Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Dialkylamino-sulfonyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkenyloxy oder Alkinyloxy mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen steht und

R³ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Heterocyclyl der nachstehenden Formeln steht,



worin

Q¹, Q² und Q³ jeweils für Sauerstoff oder Schwefel stehen sowie

R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, für C₂-C₁₀-Alkyliden-amino, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C₂-C₆-Alkenyl oder C₂-C₆-Alkynyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Alkylamino oder C₁-C₆-Alkyl-carbonylamino, für C₃-C₆-Alkenyloxy, für Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, C₃-C₆-Cycloalkylamino oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Phenyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl steht,

R⁵ für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C₂-C₆-Alkenyl oder C₂-C₆-Alkynyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylamino oder C₁-C₆-Alkyl-carbonylamino, für C₃-C₆-Alkenyloxy, C₃-C₆-Alkynyloxy, C₃-C₆-Alkenylthio, C₃-C₆-Alkynylthio, C₃-C₆-Alkenylamino oder C₃-C₆-Alkynylamino, für Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, für jeweils gegebenenfalls durch Methyl und/oder Ethyl substituiertes Aziridino, Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, C₅-C₆-Cycloalkenyl, C₃-C₆-Cycloalkyloxy, C₃-C₆-Cycloalkylthio, C₃-C₆-Cycloalkylamino, C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkoxy, C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkylthio oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkylamino, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, Phenyl-C₁-C₄-alkyl, Phenoxy, Phenyl-C₁-C₄-alkoxy, Phenylthio, Phenyl-C₁-C₄-alkylthio, Phenyl-amino oder Phenyl-C₁-C₄-alkylamino steht, oder

R^4 und R^5 zusammen für gegebenenfalls verzweigtes Alkandiyl mit 3 bis 11 Kohlenstoffatomen stehen, ferner

R^6 , R^7 und R^8 gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder C_1 - C_4 -Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkenylthio, Alkynylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen stehen,

sowie die Natrium-, Kalium-, Magnesium-, Calcium-, Ammonium-, C_1 - C_4 -Alkyl-ammonium-, Di- $(C_1$ - C_4 -alkyl)-ammonium-, Tri- $(C_1$ - C_4 -alkyl)-ammonium-, Tetra- $(C_1$ - C_4 -alkyl)-ammonium, Tri- $(C_1$ - C_4 -alkyl)-sulfonium-, C_5 - oder C_6 -Cycloalkyl-ammonium- und Di- $(C_1$ - C_2 -alkyl)-benzyl-ammonium-Salze von Verbindungen der Formel (I).

3. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß darin

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

A für eine Einfachbindung, für Sauerstoff oder für die Gruppierung N-R steht, worin R für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Propenyl, Butenyl, Propinyl, Butinyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl steht,

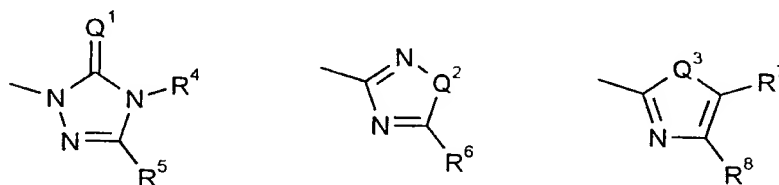
Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R^1 für Wasserstoff, Formyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, Methoxyamino, Ethoxyamino, n- oder i-Propoxyamino, n-, i-, s- oder t-Butoxyamino, Di-

methylamino, Diethylamino, N-Methoxy-N-methyl-amino, Acetyl, Propionyl, Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, n-, i-, s- oder t-Butylsulfonyl, Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Methyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclopropylcarbonyl oder Cyclopropylsulfonyl steht,

R^2 für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i- oder s-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Dimethylaminosulfonyl oder Diethylaminosulfonyl, für Propenyl, Butenyl, Propinyl, Butinyl, Propenyl-oxy, Butenyl-oxy, Propinyl-oxy oder Butinyl-oxy steht und

R^3 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Heterocyclyl der nachstehenden Formeln steht



worin

Q^1 , Q^2 und Q^3 jeweils für Sauerstoff oder Schwefel stehen sowie

R^4 für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für C_3 - C_8 -Alkylidenamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-

Butoxy, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, für Propenyloxy oder Butenyloxy, für Dimethylamino oder Diethylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl und/oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylamino, Cyclobutylamino, Cyclopentylamino, Cyclohexylamino, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl, Trifluormethyl und/oder Methoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl steht,

R⁵ für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, für Propenyloxy, Butenyloxy, Propinyl-oxy, Butinyloxy, Propenylthio, Propadienylthio Butenylthio, Propinylthio, Butinylthio, Propenylamino, Butenylamino, Propinylamino oder Butinylamino, für Dimethylamino, Diethylamino oder Dipropylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl und/oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopentenyl, Cyclohexenyl, Cyclopropyloxy, Cyclobutyloxy, Cyclopentyloxy, Cyclohexyloxy, Cyclopropylthio, Cyclobutylthio, Cyclopentylthio, Cyclohexylthio, Cyclopropylamino, Cyclobutylamino, Cyclopentylamino, Cyclohexylamino, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Cyclopropylmethoxy, Cyclobutylmethoxy, Cyclopentylmethoxy, Cyclohexylmethoxy, Cyclopropylmethylthio, Cyclobutylmethylthio, Cyclopentylmethylthio, Cyclohexylmethylthio, Cyclopropylmethylamino, Cyclobutylmethylamino, Cyclopentylmethylamino oder Cyclohexylmethylamino, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl, Trifluormethyl, Methoxy und/oder Methoxycarbonyl substituiertes Phenyl, Benzyl, Phenoxy,

Benzyloxy, Phenylthio, Benzylthio, Phenylamino oder Benzylamino steht, oder

R^4 und R^5 zusammen für gegebenenfalls verzweigtes Alkandiyl mit 3 bis 11 Kohlenstoffatomen stehen, ferner

5 R^6 , R^7 und R^8 gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituier-
10 tes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Propenyl, Butenyl, Propinyl, Butinyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Propenyloxy, Butenyloxy, Propinyloxy, Butinyloxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Propenylthio, Butenylthio, Propinylthio, Butinylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl, oder für
15 Cyclopropyl stehen.

4. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß darin

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

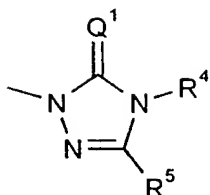
20 A für eine Einfachbindung steht,

Q für Sauerstoff oder Schwefel steht,

R^1 für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl steht,

25 R^2 für Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio - jeweils in 6-Position - steht und

R^3 für gegebenenfalls substituiertes Triazolinyl der nachstehenden Formel steht



worin

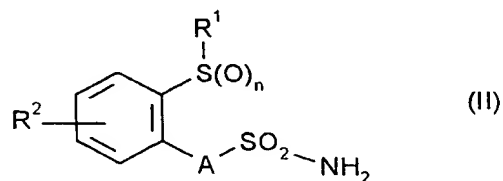
Q^1 für Sauerstoff oder Schwefel steht sowie

R^4 für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, für Propenyl oder Propinyl, für Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, oder für Cyclopropyl steht,

R^5 für Wasserstoff, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Propenyl oder Propinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, für Propenyloxy oder Cyclopropyl, steht.

5. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 und von deren Salzen, dadurch gekennzeichnet, daß man

(a) Aminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (II)



in welcher

n , A , R^1 und R^2 die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,

-75-

mit (Thio)Carbonsäurederivaten der allgemeinen Formel (III)



in welcher

Q und R³ die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben und

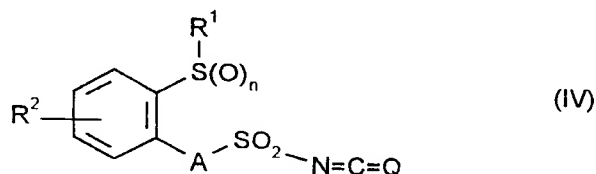
5 Z für Halogen, Alkoxy, Aryloxy oder Arylalkoxy steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder, daß man

(b) Sulfonyliso(thio)cyanate der allgemeinen Formel (IV)

10



in welcher

n, A, Q, R¹ und R² die oben angegebene Bedeutung haben,

mit Heterocyclen der allgemeinen Formel (V)



15

in welcher

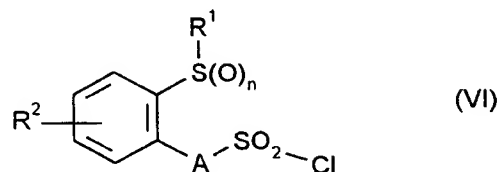
R³ die oben angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

-76-

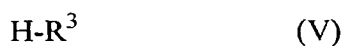
oder, daß man

(c) Chlorsulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (VI)



in welcher

5 n , A , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,
mit Heterocyclen der allgemeinen Formel (V)



in welcher

R^3 die oben angegebene Bedeutung hat,

10 und Metall(thio)cyanaten der allgemeinen Formel (VII)



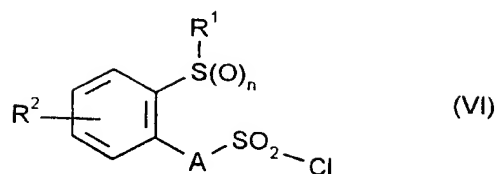
in welcher

Q die oben angegebene Bedeutung hat,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls
15 in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder, daß man

(d) Chlorsulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (VI)

-77-



in welcher

n , A , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

mit (Thio)Carbonsäureamiden der allgemeinen Formel (VIII)

5



in welcher

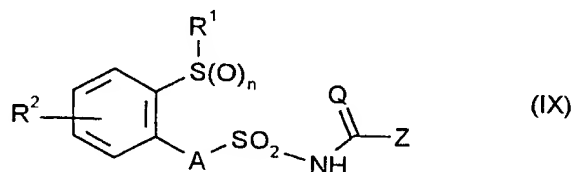
Q und R^3 die oben angegebene Bedeutung haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

10

oder, daß man

(e) Sulfonylamino(thio)carbonylverbindungen der allgemeinen Formel (IX)



in welcher

n , A , Q , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben und

15

Z für Halogen, Alkoxy, Aryloxy oder Arylalkoxy steht,

mit Heterocyclen der allgemeinen Formel (V)



in welcher

R^3 die oben angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in
5 Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder, daß man

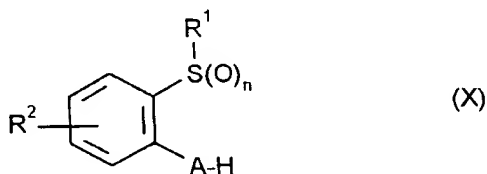
(f) Heterocyclen der allgemeinen Formel (V)



in welcher

10 R^3 die oben angegebene Bedeutung hat,

mit Chlorsulfonyliso(thio)cyanat gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt und die hierbei gebildeten Addukte in situ mit Benzolderivaten der allgemeinen Formel (X)



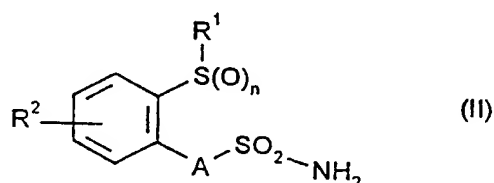
15 in welcher

n , A , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in
Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

20 und gegebenenfalls die nach den Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) oder (f) erhaltenen Verbindungen der Formel (I) nach üblichen Methoden in Salze überführt.

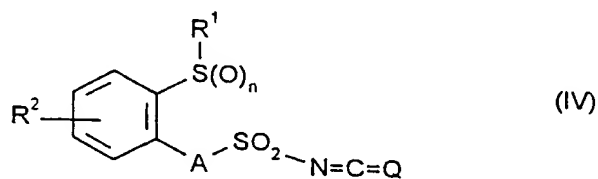
6. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer Verbindung der Formel (I) oder einem ihrer Salze gemäß Anspruch 1.
7. Verwendung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) oder deren Salzen gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung von unerwünschtem Pflanzenwachstum.
8. Verfahren zur Bekämpfung von Unkräutern, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der allgemeinen Formel (I) oder deren Salze gemäß Anspruch 1 auf die Unkräuter oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
9. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der allgemeinen Formel (I) oder deren Salze gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.
10. Aminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (II)



in welcher

n , A , R^1 und R^2 die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben, ausgenommen die Verbindung 2,6-Bis-methylthio-benzolsulfonamid.

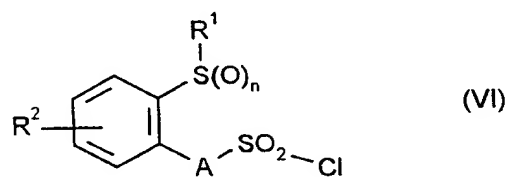
11. Sulfonyliso(thio)cyanate der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

n, A, Q, R¹ und R² die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,
ausgenommen die Verbindung 2,6-Bis-methylthio-phenylsulfonylisocyanat.

12. Chlorsulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (VI)



5 in welcher

n, A, R¹ und R² die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 97/02520

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C07D249/12 C07D271/06 A01N47/38 A01N43/836 C07C323/67
C07C317/14 C07C331/32

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C07D C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| X | EP 0 341 489 A (BAYER AG) 15 November 1989 cited in the application see the whole document --- | 1-12 |
| X | EP 0 422 469 A (BAYER AG) 17 April 1991 cited in the application see the whole document --- | 1-12 |
| X | EP 0 425 948 A (BAYER AG) 8 May 1991 cited in the application see the whole document --- | 1-12 |
| X | EP 0 431 291 A (BAYER AG) 12 June 1991 cited in the application see the whole document --- | 1-12 |
| | -/-- | |

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

T later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

X document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

Y document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

* & * document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

12 August 1997

Date of mailing of the international search report

25.08.97

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Allard, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internauonal Application No

PCT/EP 97/02520

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| X | EP 0 570 171 A (BAYER AG) 7 October 1992 cited in the application see the whole document --- | 1-12 |
| X | EP 0 534 266 A (BAYER AG) 31 March 1993 cited in the application see the whole document --- | 1-12 |
| X | EP 0 459 244 A (BAYER AG) 4 December 1991 cited in the application see the whole document --- | 1-12 |
| X | EP 0 569 810 A (BAYER AG) 18 November 1993 see the whole document --- | 1-12 |
| X | WO 95 27703 A (BAYER AKTIENGESELLSCHAFT) 19 October 1995 see the whole document --- | 1-12 |
| X | WO 94 08979 A (BAYER AKTIENGESELLSCHAFT) 28 April 1994 see the whole document --- | 1-12 |
| X | WO 96 11188 A (BAYER AKTIENGESELLSCHAFT) 18 April 1996 see the whole document --- | 1-12 |
| X | EP 0 023 141 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 28 January 1981 see the whole document, especially claims 18 and 19 --- | 10-12 |
| X | EP 0 023 422 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 4 February 1981 see the whole document, especially pages 27-34, as well as claim 18 --- | 10-12 |
| X | US 4 645 527 A (K.S. AMUTI ET AL.) 24 February 1987 see especially examples 3 and 4 --- | 10,12 |
| X | DE 36 24 103 A (AGFA-GEVAERT AG) 21 January 1988 see especially page 4, radical A4, and page 8, preparation of A4, step c) --- | 12 |
| X | DATABASE CROSSFIRE Beilstein Informationssysteme GmbH, Frankfurt DE XP002037542 see Beilstein Registry Numbers 2648548, 2647409 und 2695486 & GAZZ. CHIM. ITAL., vol. 90, 1960, pages 1277-89, --- | 10,12 |
| | --- -/-- | |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 97/02520

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|--|-----------------------|
| X | <p>DATABASE CROSSFIRE Beilstein Informationssysteme GmbH, Frankfurt DE XP002037543 see Beilstein Registry Number 3277821 & J. CHEM. SOC., vol. 73, 1898, page 753</p> | 12 |
| X | <p>--- COLLECTION OF CZECHOSLOVAK CHEMICAL COMMUNICATIONS, vol. 47, no. 1, 1982, PRAGUE CS, pages 72-87, XP002037538 K. SINDELAR ET AL.: "Tricyclic psychotropic agents containing two chalcogen atoms in the central ring: Synthesis of 11-(dimethylaminoalkyl) derivatives of 11H-dibenzo[b,e]-1,4-dioxepin and 11H-dibenzo[b,e]-1,4-dithiepin" see page 81, preparation of XIV, first stage</p> | 12 |
| X | <p>--- CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 112, no. 21, 21 May 1990 Columbus, Ohio, US; abstract no. 198428t, page 722; XP002037539 see abstract & CHEMICAL ABSTRACTS, 12TH COLLECTIVE INDEX, FORMULA, page 4158F see under C7H9NO2S2, first-mentioned compound & PL 134 567 A (AKADEMIA MEDYCZNA GDANSK)</p> | 10 |
| X | <p>--- CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 96, no. 13, 29 March 1982 Columbus, Ohio, US; abstract no. 100769h, S.G. SHEIKO ET AL.: "Bactericide activity of some benzene derivatives activated by nitro- and trifluoromethylsulfonyl groups" page 401; XP002037540 see abstract & FIZIOL. AKT. VESHCHESHTVA, vol. 13, 1981, pages 24-6,</p> | 12 |

-/--

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 97/02520

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| X | <p>CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 85, no. 19, 8 November 1976 Columbus, Ohio, US; abstract no. 142812v, page 499; XP002037541 see abstract & JP 76 070 740 A (MITSUI TOATSU CHEMICALS, INC.) -----</p> | 12 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/02520

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| EP 341489 A | 15-11-89 | DE 3815765 A | 23-11-89 |
| | | DE 58909390 D | 28-09-95 |
| | | JP 2011579 A | 16-01-90 |
| | | US 5405970 A | 11-04-95 |
| | | US 5532378 A | 02-07-96 |
| | | US 5057144 A | 15-10-91 |
| | | US 5085684 A | 04-02-92 |
| | | US 5625074 A | 29-04-97 |
| | | US 5652372 A | 29-07-97 |
| | | US 5631380 A | 20-05-97 |
| | | US 5094683 A | 10-03-92 |
| | | US 5149356 A | 22-09-92 |
| | | US 5241074 A | 31-08-93 |
| | | US 5276162 A | 04-01-94 |
| EP 422469 A | 17-04-91 | DE 3934081 A | 18-04-91 |
| | | AU 627080 B | 13-08-92 |
| | | AU 6459190 A | 18-04-91 |
| | | CA 2027206 A | 13-04-91 |
| | | CA 2189698 A | 13-04-91 |
| | | CZ 9004950 A | 17-07-96 |
| | | DE 59010314 D | 13-06-96 |
| | | EP 0683157 A | 22-11-95 |
| | | ES 2087107 T | 16-07-96 |
| | | JP 3133966 A | 07-06-91 |
| | | PL 165494 B | 30-12-94 |
| | | US 5405970 A | 11-04-95 |
| | | US 5380863 A | 10-01-95 |
| | | US 5599944 A | 04-02-97 |
| | | US 5532378 A | 02-07-96 |
| | | US 5554761 A | 10-09-96 |
| | | US 5057144 A | 15-10-91 |
| | | US 5085684 A | 04-02-92 |
| | | US 5625074 A | 29-04-97 |
| | | US 5652372 A | 29-07-97 |
| | | US 5631380 A | 20-05-97 |
| | | US 5094683 A | 10-03-92 |
| | | US 5149356 A | 22-09-92 |
| | | US 5241074 A | 31-08-93 |
| | | US 5276162 A | 04-01-94 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/02520

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| EP 425948 A | 08-05-91 | DE 3936622 A | 08-05-91 |
| | | AU 623284 B | 07-05-92 |
| | | AU 6360290 A | 09-05-91 |
| | | CA 2029105 A | 04-05-91 |
| | | DE 59009966 D | 25-01-96 |
| | | EP 0661262 A | 05-07-95 |
| | | ES 2081334 T | 01-03-96 |
| | | JP 3153674 A | 01-07-91 |
| | | US 5380864 A | 10-01-95 |
| | | US 5380863 A | 10-01-95 |
| | | US 5599944 A | 04-02-97 |
| | | US 5085684 A | 04-02-92 |
| | | US 5149356 A | 22-09-92 |
| | | US 5238910 A | 24-08-93 |
| | | US 5276162 A | 04-01-94 |
| EP 431291 A | 12-06-91 | DE 3936623 A | 08-05-91 |
| | | AU 623037 B | 30-04-92 |
| | | AU 6360190 A | 09-05-91 |
| | | CA 2029132 A | 04-05-91 |
| | | JP 3153675 A | 01-07-91 |
| | | US 5380863 A | 10-01-95 |
| | | US 5599944 A | 04-02-97 |
| | | US 5085684 A | 04-02-92 |
| | | US 5149356 A | 22-09-92 |
| | | US 5276162 A | 04-01-94 |
| EP 570171 A | 18-11-93 | FI 95085 B | 31-08-95 |
| | | JP 6161498 A | 07-06-94 |
| | | US 5579433 A | 26-11-96 |
| EP 534266 A | 31-03-93 | DE 4131842 A | 01-04-93 |
| | | CA 2078811 A | 26-03-93 |
| | | DE 59208541 D | 03-07-97 |
| | | ES 2102433 T | 01-08-97 |
| | | JP 5213907 A | 24-08-93 |
| | | US 5488028 A | 30-01-96 |
| | | US 5554761 A | 10-09-96 |
| | | US 5631380 A | 20-05-97 |
| | | US 5300480 A | 05-04-94 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/02520

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| EP 459244 A | 04-12-91 | DE 4017338 A | 05-12-91 |
| | | DE 59107443 D | 04-04-96 |
| | | JP 4235175 A | 24-08-92 |
| | | US 5205853 A | 27-04-93 |
| | | US 5256632 A | 26-10-93 |
| EP 569810 A | 18-11-93 | DE 4215878 A | 18-11-93 |
| | | AU 3710593 A | 18-11-93 |
| | | BR 9301834 A | 16-11-93 |
| | | CA 2095967 A | 15-11-93 |
| | | JP 6080653 A | 22-03-94 |
| | | US 5256632 A | 26-10-93 |
| WO 9527703 A | 19-10-95 | DE 4411913 A | 12-10-95 |
| | | AU 2136595 A | 30-10-95 |
| | | CA 2187215 A | 19-10-95 |
| | | CN 1145068 A | 12-03-97 |
| | | EP 0754179 A | 22-01-97 |
| WO 9408979 A | 28-04-94 | DE 4234801 A | 21-04-94 |
| | | AU 678775 B | 12-06-97 |
| | | AU 5110793 A | 09-05-94 |
| | | CA 2146877 A | 28-04-94 |
| | | DE 59306215 D | 22-05-97 |
| | | EP 0664797 A | 02-08-95 |
| | | ES 2101346 T | 01-07-97 |
| | | HU 71832 A | 28-02-96 |
| | | JP 8502268 T | 12-03-96 |
| | | US 5552369 A | 03-09-96 |
| WO 9611188 A | 18-04-96 | DE 4435547 A | 11-04-96 |
| | | AU 3652695 A | 02-05-96 |
| | | EP 0784616 A | 23-07-97 |
| EP 23141 A | 28-01-81 | US 4310346 A | 12-01-82 |
| | | AU 2489884 A | 05-07-84 |
| | | AU 536787 B | 24-05-84 |
| | | AU 6060180 A | 22-01-81 |
| | | BR 8004382 A | 24-02-81 |
| | | CA 1144923 A | 19-04-83 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/02520

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|--|--|
| EP 23141 A | | CA 1146548 A EP 0070041 A GB 2057429 A,B JP 56029563 A SU 1482508 A US 4417917 A | 17-05-83 19-01-83 01-04-81 24-03-81 23-05-89 29-11-83 |
| EP 23422 A | 04-02-81 | US 4452628 A AR 227646 A AU 548070 B AU 2489984 A AU 536229 B AU 6080380 A BR 8004547 A CA 1128043 A CA 1139776 A EP 0064322 A JP 56036467 A SU 1103783 A US 4534788 A | 05-06-84 30-11-82 21-11-85 05-07-84 03-05-84 09-07-81 03-02-81 20-07-82 18-01-83 10-11-82 09-04-81 15-07-84 13-08-85 |
| US 4645527 A | 24-02-87 | NONE | |
| DE 3624103 A | 21-01-88 | NONE | |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 97/02520

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C07D249/12 C07D271/06 A01N47/38 A01N43/836 C07C323/67
C07C317/14 C07C331/32

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C07D C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| X | EP 0 341 489 A (BAYER AG) 15.November 1989 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | EP 0 422 469 A (BAYER AG) 17.April 1991 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | EP 0 425 948 A (BAYER AG) 8.Mai 1991 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | EP 0 431 291 A (BAYER AG) 12.Juni 1991 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| | -/-- | |

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

12.August 1997

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

2 5. 08. 97

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Allard, M

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| X | EP 0 570 171 A (BAYER AG) 7.Oktober 1992 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | EP 0 534 266 A (BAYER AG) 31.März 1993 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | EP 0 459 244 A (BAYER AG) 4.Dezember 1991 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | EP 0 569 810 A (BAYER AG) 18.November 1993 siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | WO 95 27703 A (BAYER AKTIENGESSELLSCHAFT) 19.Oktober 1995 siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | WO 94 08979 A (BAYER AKTIENGESSELLSCHAFT) 28.April 1994 siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | WO 96 11188 A (BAYER AKTIENGESSELLSCHAFT) 18.April 1996 siehe das ganze Dokument --- | 1-12 |
| X | EP 0 023 141 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 28.Januar 1981 siehe das ganze Dokument, insbesondere Ansprüche 18 und 19 --- | 10-12 |
| X | EP 0 023 422 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 4.Februar 1981 siehe das ganze Dokument, insbesondere Seiten 27-34, sowie Anspruch 18 --- | 10-12 |
| X | US 4 645 527 A (K.S. AMUTI ET AL.) 24.Februar 1987 siehe insbesondere Beispiele 3 und 4 --- | 10,12 |
| X | DE 36 24 103 A (AGFA-GEVAERT AG) 21.Januar 1988 siehe insbesondere Seite 4, Rest A4, und Seite 8, Herstellung von A4, Schritt c) --- | 12 |
| X | DATABASE CROSSFIRE Beilstein Informationssysteme GmbH, Frankfurt DE XP002037542 siehe Beilstein Registry Numbers 2648548, 2647409 und 2695486 & GAZZ. CHIM. ITAL., Bd. 90, 1960, Seiten 1277-89, --- | 10,12 |
| | --- | -/-- |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/02520

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|--|--------------------|
| X | <p>DATABASE CROSSFIRE Beilstein Informationssysteme GmbH, Frankfurt DE XP002037543 siehe Beilstein Registry Number 3277821 & J. CHEM. SOC., Bd. 73, 1898, Seite 753</p> | 12 |
| X | <p>--- COLLECTION OF CZECHOSLOVAK CHEMICAL COMMUNICATIONS, Bd. 47, Nr. 1, 1982, PRAGUE CS, Seiten 72-87, XP002037538 K. SINDELAR ET AL.: "Tricyclic psychotropic agents containing two chalcogen atoms in the central ring: Synthesis of 11-(dimethylaminoalkyl) derivatives of 11H-dibenzo[b,e]-1,4-dioxepin and 11H-dibenzo[b,e]-1,4-dithiepin" siehe Seite 81, Herstellung von XIV, erste Stufe</p> | 12 |
| X | <p>--- CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 112, no. 21, 21.Mai 1990 Columbus, Ohio, US; abstract no. 198428t, Seite 722; XP002037539 siehe Zusammenfassung & CHEMICAL ABSTRACTS, 12TH COLLECTIVE INDEX, FORMULA, Seite 4158F siehe unter C7H9N02S2, erstgenannte Verbindung & PL 134 567 A (AKADEMIA MEDYCZNA GDANSK)</p> | 10 |
| X | <p>--- CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 96, no. 13, 29.März 1982 Columbus, Ohio, US; abstract no. 100769h, S.G. SHEIKO ET AL.: "Bactericide activity of some benzene derivatives activated by nitro- and trifluoromethylsulfonyl groups" Seite 401; XP002037540 siehe Zusammenfassung & FIZIOL. AKT. VESHCHISTVA, Bd. 13, 1981, Seiten 24-6,</p> | 12 |

-/--

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|--|--------------------|
| X | CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 85, no. 19, 8.November 1976 Columbus, Ohio, US; abstract no. 142812v, Seite 499; XP002037541 siehe Zusammenfassung & JP 76 070 740 A (MITSUI TOATSU CHEMICALS, INC.) ----- | 12 |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/02520

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| EP 341489 A | 15-11-89 | DE 3815765 A | 23-11-89 |
| | | DE 58909390 D | 28-09-95 |
| | | JP 2011579 A | 16-01-90 |
| | | US 5405970 A | 11-04-95 |
| | | US 5532378 A | 02-07-96 |
| | | US 5057144 A | 15-10-91 |
| | | US 5085684 A | 04-02-92 |
| | | US 5625074 A | 29-04-97 |
| | | US 5652372 A | 29-07-97 |
| | | US 5631380 A | 20-05-97 |
| | | US 5094683 A | 10-03-92 |
| | | US 5149356 A | 22-09-92 |
| | | US 5241074 A | 31-08-93 |
| | | US 5276162 A | 04-01-94 |
| EP 422469 A | 17-04-91 | DE 3934081 A | 18-04-91 |
| | | AU 627080 B | 13-08-92 |
| | | AU 6459190 A | 18-04-91 |
| | | CA 2027206 A | 13-04-91 |
| | | CA 2189698 A | 13-04-91 |
| | | CZ 9004950 A | 17-07-96 |
| | | DE 59010314 D | 13-06-96 |
| | | EP 0683157 A | 22-11-95 |
| | | ES 2087107 T | 16-07-96 |
| | | JP 3133966 A | 07-06-91 |
| | | PL 165494 B | 30-12-94 |
| | | US 5405970 A | 11-04-95 |
| | | US 5380863 A | 10-01-95 |
| | | US 5599944 A | 04-02-97 |
| | | US 5532378 A | 02-07-96 |
| | | US 5554761 A | 10-09-96 |
| | | US 5057144 A | 15-10-91 |
| | | US 5085684 A | 04-02-92 |
| | | US 5625074 A | 29-04-97 |
| | | US 5652372 A | 29-07-97 |
| | | US 5631380 A | 20-05-97 |
| | | US 5094683 A | 10-03-92 |
| | | US 5149356 A | 22-09-92 |
| | | US 5241074 A | 31-08-93 |
| | | US 5276162 A | 04-01-94 |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/02520

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| EP 425948 A | 08-05-91 | DE 3936622 A | 08-05-91 |
| | | AU 623284 B | 07-05-92 |
| | | AU 6360290 A | 09-05-91 |
| | | CA 2029105 A | 04-05-91 |
| | | DE 59009966 D | 25-01-96 |
| | | EP 0661262 A | 05-07-95 |
| | | ES 2081334 T | 01-03-96 |
| | | JP 3153674 A | 01-07-91 |
| | | US 5380864 A | 10-01-95 |
| | | US 5380863 A | 10-01-95 |
| | | US 5599944 A | 04-02-97 |
| | | US 5085684 A | 04-02-92 |
| | | US 5149356 A | 22-09-92 |
| | | US 5238910 A | 24-08-93 |
| | | US 5276162 A | 04-01-94 |
| EP 431291 A | 12-06-91 | DE 3936623 A | 08-05-91 |
| | | AU 623037 B | 30-04-92 |
| | | AU 6360190 A | 09-05-91 |
| | | CA 2029132 A | 04-05-91 |
| | | JP 3153675 A | 01-07-91 |
| | | US 5380863 A | 10-01-95 |
| | | US 5599944 A | 04-02-97 |
| | | US 5085684 A | 04-02-92 |
| | | US 5149356 A | 22-09-92 |
| | | US 5276162 A | 04-01-94 |
| EP 570171 A | 18-11-93 | FI 95085 B | 31-08-95 |
| | | JP 6161498 A | 07-06-94 |
| | | US 5579433 A | 26-11-96 |
| EP 534266 A | 31-03-93 | DE 4131842 A | 01-04-93 |
| | | CA 2078811 A | 26-03-93 |
| | | DE 59208541 D | 03-07-97 |
| | | ES 2102433 T | 01-08-97 |
| | | JP 5213907 A | 24-08-93 |
| | | US 5488028 A | 30-01-96 |
| | | US 5554761 A | 10-09-96 |
| | | US 5631380 A | 20-05-97 |
| | | US 5300480 A | 05-04-94 |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/02520

PCI/EP 97/02520

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung | --- |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|-----|
| EP 459244 A | 04-12-91 | DE 4017338 A | 05-12-91 | |
| | | DE 59107443 D | 04-04-96 | |
| | | JP 4235175 A | 24-08-92 | |
| | | US 5205853 A | 27-04-93 | |
| | | US 5256632 A | 26-10-93 | |
| ----- | | | | |
| EP 569810 A | 18-11-93 | DE 4215878 A | 18-11-93 | |
| | | AU 3710593 A | 18-11-93 | |
| | | BR 9301834 A | 16-11-93 | |
| | | CA 2095967 A | 15-11-93 | |
| | | JP 6080653 A | 22-03-94 | |
| | | US 5256632 A | 26-10-93 | |
| ----- | | | | |
| WO 9527703 A | 19-10-95 | DE 4411913 A | 12-10-95 | |
| | | AU 2136595 A | 30-10-95 | |
| | | CA 2187215 A | 19-10-95 | |
| | | CN 1145068 A | 12-03-97 | |
| | | EP 0754179 A | 22-01-97 | |
| ----- | | | | |
| WO 9408979 A | 28-04-94 | DE 4234801 A | 21-04-94 | |
| | | AU 678775 B | 12-06-97 | |
| | | AU 5110793 A | 09-05-94 | |
| | | CA 2146877 A | 28-04-94 | |
| | | DE 59306215 D | 22-05-97 | |
| | | EP 0664797 A | 02-08-95 | |
| | | ES 2101346 T | 01-07-97 | |
| | | HU 71832 A | 28-02-96 | |
| | | JP 8502268 T | 12-03-96 | |
| | | US 5552369 A | 03-09-96 | |
| | | ----- | | |
| WO 9611188 A | 18-04-96 | DE 4435547 A | 11-04-96 | |
| | | AU 3652695 A | 02-05-96 | |
| | | EP 0784616 A | 23-07-97 | |
| ----- | | | | |
| EP 23141 A | 28-01-81 | US 4310346 A | 12-01-82 | |
| | | AU 2489884 A | 05-07-84 | |
| | | AU 536787 B | 24-05-84 | |
| | | AU 6060180 A | 22-01-81 | |
| | | BR 8004382 A | 24-02-81 | |
| | | CA 1144923 A | 19-04-83 | |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/02520

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| EP 23141 A | | CA 1146548 A | 17-05-83 |
| | | EP 0070041 A | 19-01-83 |
| | | GB 2057429 A,B | 01-04-81 |
| | | JP 56029563 A | 24-03-81 |
| | | SU 1482508 A | 23-05-89 |
| | | US 4417917 A | 29-11-83 |
| ----- | | | |
| EP 23422 A | 04-02-81 | US 4452628 A | 05-06-84 |
| | | AR 227646 A | 30-11-82 |
| | | AU 548070 B | 21-11-85 |
| | | AU 2489984 A | 05-07-84 |
| | | AU 536229 B | 03-05-84 |
| | | AU 6080380 A | 09-07-81 |
| | | BR 8004547 A | 03-02-81 |
| | | CA 1128043 A | 20-07-82 |
| | | CA 1139776 A | 18-01-83 |
| | | EP 0064322 A | 10-11-82 |
| | | JP 56036467 A | 09-04-81 |
| | | SU 1103783 A | 15-07-84 |
| | | US 4534788 A | 13-08-85 |
| ----- | | | |
| US 4645527 A | 24-02-87 | KEINE | |
| ----- | | | |
| DE 3624103 A | 21-01-88 | KEINE | |
| ----- | | | |



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



Veröffentlichungsnummer: **0 569 810 A1**

12

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

21 Anmeldenummer: **93107139.3**

22 Anmeldetag: **03.05.93**

51 Int. Cl.⁵: **C07D 261/06, A01N 43/00,
C07D 263/30, C07D 271/06,
C07D 271/08, C07D 277/20,
C07D 285/08**

30 Priorität: **14.05.92 DE 4215878**

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:
18.11.93 Patentblatt 93/46

84 Benannte Vertragsstaaten:
BE CH DE ES FR GB IT LI NL

71 Anmelder: **BAYER AG**

D-51368 Leverkusen(DE)

72 Erfinder: **Kirsten, Rolf, Dr.
Carl-Langhans-Strasse 27
W-4019 Monheim(DE)**

Erfinder: **Wolf, Hilmar, Dr.
Zum Bräuhaus 14**

W-4018 Langenfeld(DE)

Erfinder: **Santel, Hans-Joachim, Dr.
Grünstrasse 9a**

W-5090 Leverkusen 1(DE)

Erfinder: **Lürssen, Klaus, Dr.**

August-Kierspel-Strasse 145

W-5060 Bergisch Gladbach 2(DE)

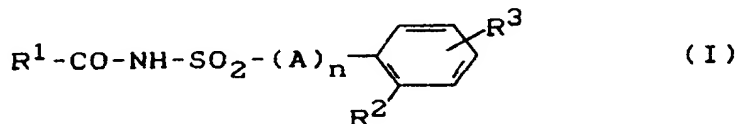
Erfinder: **Schmidt, Robert R., Dr.**

Im Waldwinkel 110

W-5060 Bergisch Gladbach 2(DE)

54 **Sulfonylierte Carbonsäureamide Herbizide.**

57 Die Erfindung betrifft neue sulfonylierte Carbonsäureamide der allgemeinen Formel (I)



in welcher

n, A, R¹, R² und R³ die in der Beschreibung angegebenen Definitionen haben sowie deren Salze, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

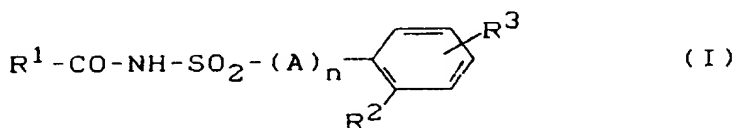
EP 0 569 810 A1

Die Erfindung betrifft neue sulfonylierte Carbonsäureamide, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

Einige sulfonylierte Carbonsäureamide, wie z.B. 2-Dimethylamino-N-(4-methyl-phenylsulfonyl)-5-thiazol-carboxamid (vgl. J. Org. Chem. 46 (1981), 2790-2793), N-(4-Methyl-phenylsulfonyl)-5-phenyl-1,3,4-oxadiazol-2-carboxamid (vgl. Farm. Zh. (Kiev) 1980, 65 - zitiert in Chem. Abstracts 94: 15648g) und 5-(N-Isopropyl-phenylamino)-N-(4-methyl-phenylsulfonyl)-2-oxazol-carboxamid (vgl. J. Heterocycl. Chem. 17 (1980), 711-715) sind bereits bekannt. Über die biologischen Eigenschaften dieser Verbindungen ist jedoch nichts bekannt geworden.

Weiter sind verschiedene sulfonylierte Carbonsäureamide als potentielle Herbizide bekanntgeworden (vgl. EP-A 244166/US-P 4838925, DE-OS 4029753 und EP-A 459244); diese Verbindungen haben jedoch keine größere Bedeutung erlangt.

Es wurden nun die neuen sulfonylierten Carbonsäureamide der allgemeinen Formel (I)



in welcher

n für die Zahlen 0 oder 1 steht,

A für Sauerstoff, Imino (NH) oder Methylen (CH₂) steht,

R¹ für einen fünfgliedrigen Heteroarylrest aus der Reihe Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, Oxadiazolyl, Thiadiazolyl steht, welcher gegebenenfalls einfach oder mehrfach, insbesondere einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch Halogen oder durch gegebenenfalls halogen-substituiertes C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, Phenyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₆-Alkylamino oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino substituiert ist,

R² für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Carboxy, Phenyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, für Di-(C₁-C₂-alkyl)-aminosulfonyl, für N-(C₁-C₂-Alkyl)-N-(C₁-C₂-alkoxy)-amino-sulfonyl oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder C₁-C₂-Alkoxy substituiertes C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl steht, und

R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methyl steht,

sowie Salze von Verbindungen der Formel (I) gefunden.

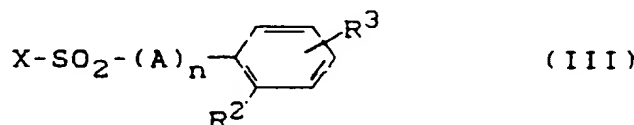
Man erhält die neuen sulfonylierten Carbonsäureamide der Formel (I), wenn man

(a) Carbonsäureamide der allgemeinen Formel (II)



in welcher

R¹ die oben angegebene Bedeutung hat,
mit Sulfonylierungsmitteln der allgemeinen Formel (III)



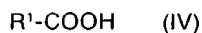
in welcher

n, A, R² und R³ die oben angegebene Bedeutung haben und

X für Halogen steht,

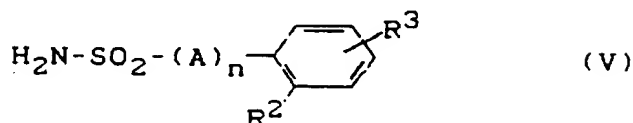
gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder wenn man

(b) Carbonsäuren der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

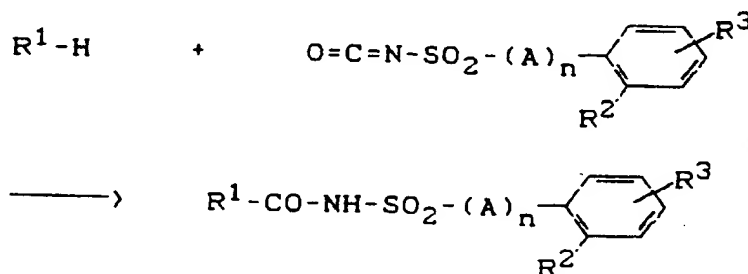
R^1 die oben angegebene Bedeutung hat,
oder reaktionsfähige Derivate der Carbonsäuren der Formel (IV)
mit Aminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (V)



in welcher

n , A , R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,
oder mit reaktionsfähigen Derivaten der Verbindungen der Formel (V)
gegebenenfalls in Gegenwart von Reaktionshilfsmitteln und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdün-
nungsmitteln umgesetzt und gegebenenfalls die nach Verfahren (a) oder (b) erhaltenen Produkte nach
üblichen Methoden in Salze überführt.

Ein weiterer möglicher Herstellungsweg für bestimmte erfindungsgemäße Verbindungen der Formel (I) -
insbesondere für den Fall, daß R^1 für 2-Dialkylamino-thiazol-5-yl steht - ist nachstehend skizziert (vgl. J.
Org. Chem. 46 (1981), 2790-2793):



Die neuen sulfonylierten Carbonsäureamide der allgemeinen Formel (I) zeichnen sich durch starke herbizide
Wirksamkeit aus.

Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise sulfonylierte Carbonsäureamide der Formel (I), in welcher

n für die Zahlen 0 oder 1 steht,

A für Sauerstoff, Imino (NH) oder Methylen (CH_2) steht,

R^1 für einen fünfgliedrigen Heteroarylrest aus der Reihe Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl,
1,2,4-Oxadiazolyl, 1,3,4-Oxadiazolyl, 1,2,4-Thiadiazolyl, 1,3,4-Thiadiazolyl steht, welcher gegeben-
enenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Propyl, Isopropyl, Butyl, Isobutyl, sec-Butyl, tert-
Butyl, Fluormethyl, Chlormethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl,
Chlorfluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Brommethyl, Dibrommethyl, Methoxyme-
thyl, Phenyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, Isopropoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordiflu-
ormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Propylthio, Isopropylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio,
Chlordifluormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl,
Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, Propylamino, Isopropylamino und/oder Dimethylamino
substituiert ist,

R^2 für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Carboxy, Phenyl, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy,
Ethoxy, 2-Chlor-ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Propylthio, Methyl-
sulfinyl, Ethylsulfinyl, Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Propylsulfonyl, Dimethylamino-
sulfonyl, Diethylaminosulfonyl, N-Methoxy-N-methylaminosulfonyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbo-
nyl, Propoxycarbonyl, Isopropoxycarbonyl, Chlorethoxycarbonyl oder Methoxyethoxycarbonyl, und

R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methyl steht.

Die Erfindung betrifft weiter vorzugsweise Salze von Verbindungen der Formel (I) mit Basen, wie z.B. Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydroxid, -hydrid, -amid oder -carbonat, Natrium- oder Kalium-C₁-C₄-alkanolaten, Ammoniak, C₁-C₄-Alkylaminen, Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminen, Tri-(C₁-C₄-alkyl)-aminen oder auch mit

Die Erfindung betrifft insbesondere sulfonylierte Carbonsäureamide der Formel (I), in welcher

n für die Zahlen 0 oder 1 steht,

A für Methylen steht,

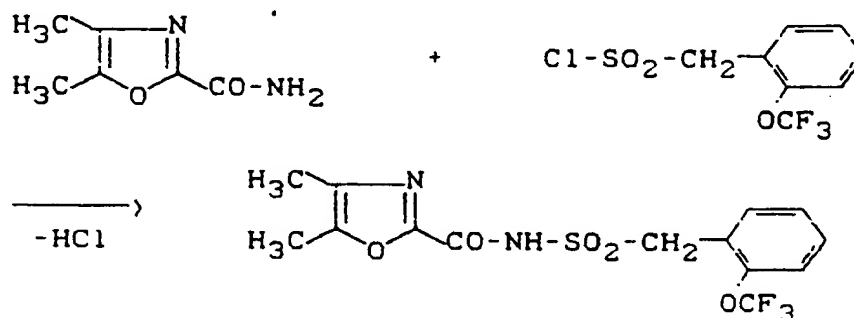
R¹ für 5-Methyl-1,2,4-oxadiazol-3-yl, 5-Ethyl-1,2,4-oxadiazol-3-yl, 5-Propyl-1,2,4-oxadiazol-3-yl, 5-Isopropyl-1,2,4-oxadiazol-3-yl, 4-Methyl-1,3-oxazol-2-yl, 4-Ethyl-1,3-oxazol-2-yl, 5-Methyl-1,3-oxazol-2-yl, 5-Ethyl-1,3-oxazol-2-yl oder 4,5-Dimethyl-1,3-oxazol-2-yl steht,

R² für Trifluormethyl, Phenyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl, und

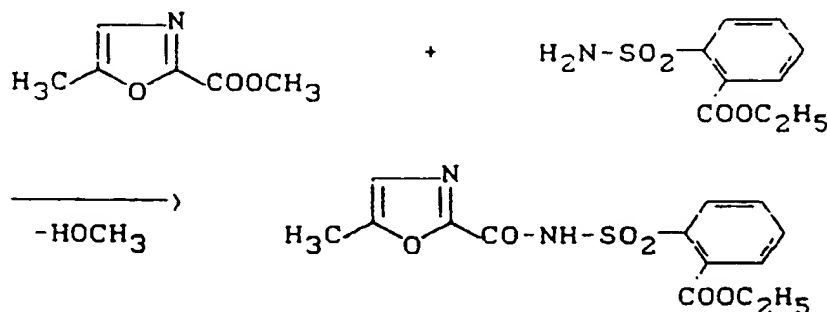
R³ für Wasserstoff, Chlor oder Methyl steht.

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten für die Endprodukte der Formel (I) sowie für die jeweiligen Ausgangsstoffe entsprechend. Diese Restdefinitionen können auch zwischen den jeweiligen Vorzugsbereichen beliebig kombiniert werden.

Verwendet man beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) beispielsweise 2-Trifluormethoxy-phenylmethansulfonsäurechlorid und 4,5-Dimethyl-1,3-oxazol-2-carbonsäureamid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf durch das folgende Formelschema skizziert werden:



Verwendet man beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) beispielsweise 5-Methyl-1,3-oxazol-2-carbonsäuremethylester und 2-Ethoxycarbonyl-benzolsulfonamid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf durch das folgende Formelschema skizziert werden:



Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Carbonsäureamide sind durch die Formel (II) allgemein definiert.

In Formel (II) hat R¹ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R¹ angegeben wurde.

Als Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (II) seien genannt:

5-Methyl-, 5-Ethyl-, 5-Propyl-, 5-Isopropyl-, 5-Butyl-, 5-Isobutyl-, 5-sec-Butyl- und 5-tert-Butyl-isoxazol-3-carbonsäureamid, 2-Methyl-, 2-Ethyl-, 2-Propyl-, 2-Isopropyl-, 2-Butyl-, 2-Isobutyl-, 2-sec-Butyl- und 2-tert-Butyl-oxazol-4-carbonsäureamid, 5-Methyl-, 5-Ethyl-, 5-Propyl-, 5-Isopropyl- und 4,5-Dimethyl-1,3-oxazol-2-carbonsäureamid, 5-Methyl-, 5-Ethyl-, 5-Propyl-, 5-Isopropyl-, 5-Butyl-, 5-Isobutyl-, 5-sec-Butyl-, 5-tert-Butyl- und 5-Phenyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäureamid, 2-Chlor-, 2-Methyl-, 2-Ethyl-, 2-Propyl-, 2-Isopropyl-, 2-Butyl-, 2-Isobutyl-, 2-sec-Butyl-, 2-tert-Butyl-, 2-Trifluormethyl-, 2-Methoxy-, 2-Ethoxy-, 2-Propoxy- und 2-Isopropoxy-thiazol-5-carbonsäureamid, 2,4-Dichlor-thiazol-5-carbonsäureamid, 2-Methyl-4-chlor-thiazol-5-carbonsäureamid, 2-Methoxy-4-chlor-thiazol-5-carbonsäureamid, 4-Methyl-, 4-Ethyl-, 4-Propyl-, 4-Isopropyl-, 4-Butyl-, 4-Isobutyl-, 4-sec-Butyl- und 4-tert-Butyl-thiazol-2-carbonsäureamid, 5-Methyl-, 5-Ethyl-, 5-Propyl-, 5-Isopropyl-, 5-Butyl-, 5-Isobutyl-, 5-sec-Butyl- und 5-tert-Butyl-thiazol-2-carbonsäureamid.

Die Carbonsäureamide der Formel (II) sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. RO-P 67530 zit. in Chem. Abstracts 95, 7258k; Helv. Chim. Acta 27 (1944), 1437 - 1438; Chem. Ber. 73 (1940), 1240 - 1252; 3. Prakt. Chem. 314 (1972), 447 - 454).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) weiter als Ausgangsstoffe benötigten Sulfonylierungsmittel sind durch die Formel (III) allgemein definiert.

In Formel (III) haben n, A, R² und R³ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n, A, R² und R³ angegeben wurden und

X steht vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, insbesondere für Chlor.

Als Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (III) seien genannt:

2-Chlor-, 2,6-Dichlor-, 2,5-Dichlor-, 2-Fluor-, 2-Brom-, 2-Cyano-, 2-Nitro-, 2-Methyl-, 2-Chlor-6-methyl-, 2-Ethoxy-, 2-Trifluormethyl-, 2-Methoxy-, 2-Methylthio-, 2-Difluormethoxy-, 2-Trifluormethoxy-, 2-(2-Chlorethoxy)-, 2-Dimethylaminosulfonyl-, 2-Phenyl-, 2-Methoxycarbonyl-, 2-Ethoxycarbonyl-, 2-Propoxycarbonyl- und 2-Isopropoxycarbonyl-benzolsulfonsäurechlorid sowie (2-Chlor-phenyl)-, (2-Cyano-phenyl)-, (2-Methoxycarbonyl-phenyl)- und (2-Trifluormethoxy-phenyl)-methansulfonsäurechlorid.

Die Sulfonylierungsmittel der Formel (III) sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. J. Org. Chem. 33 (1968), 2104; J. Org. Chem. 25 (1960), 1824; DE-AS 2 308 262; EP-OS 23 140, 23 141, 23 422, 35 893, 48 143, 51 466, 64 322, 70 041, 44 808 und 44 809; US-PS 2 929 820, 4 282 242; 4 348 220 und 4 372 778 sowie Angew. Chem. 93 (1981), 151).

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) zur Herstellung der neuen Verbindungen der Formel (I) wird vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Als Verdünnungsmittel kommen dabei praktisch alle inerten organischen Lösungsmittel in Frage. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische und aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Pentan, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Petrolether, Benzin, Ligroin, Benzol, Toluol, Xylol, Methylenchlorid, Ethylenchlorid, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Chlorbenzol und o-Dichlorbenzol, Ether wie Diethyl- und Dibutylether, Glykoldimethylether und Diglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan, Ketone wie Aceton, Methyl-ethyl-, Methylisopropyl- und Methylisobutyl-ke-ton, Ester wie Essigsäuremethylester und -ethylester, Nitrile wie z. B. Acetonitril und Propionitril, Amide wie z. B. Dimethylformamid, Dimethylacetamid und N-Methyl-pyrrolidon sowie Dimethylsulfoxid, Tetramethylensulfon und Hexamethylphosphorsäuretri- amid und Pyridin.

Als Säureakzeptoren können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (a) alle üblicherweise für derartige Umsetzungen verwendbaren Säurebindemittel eingesetzt werden. Vorzugsweise in Frage kommen Alkalimetallhydroxide wie z. B. Natrium- und Kaliumhydroxid, Erdalkalihydroxide wie z. B. Calciumhydroxid, Alkalimetallhydride wie z.B. Natrium- und Kaliumhydrid, Erdalkalimetallhydride wie z.B. Calciumhydrid, Alkalicarbonat und -alkoholate wie Natrium- und Kaliumcarbonat, Natrium- und Kalium-tert.-butylat, ferner aliphatische, aromatische oder heterocyclische Amine, beispielsweise Triethylamin, Trimethylamin, Dimethylanilin, Dimethylbenzylamin, Pyridin, Picolin, 1,5-Diazabicyclo-[4,3,0]-non-5-en (DBN), 1,8-Diazabicyclo-[5,4,0]-undec-7-en (DBU) und 1,4-Diazabicyclo-[2,2,2]-octan (DABCO).

Die Reaktionstemperaturen können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (a) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20 °C und +100 °C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 0 °C und +80 °C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) werden die jeweils benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der beiden jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Reaktionen werden im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Säureakzeptors durchgeführt, und das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der jeweils erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung erfolgt bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (a) jeweils nach üblichen Methoden.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) als Ausgangsstoffe benötigten Carbonsäuren sind durch die Formel (IV) allgemein definiert.

In Formel (IV) hat R¹ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R¹ angegeben wurde.

Als Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (IV) seien genannt:

5-Methyl-, 5-Ethyl-, 5-Propyl-, 5-Isopropyl-, 5-Butyl-, 5-Isobutyl-, 5-sec-Butyl- und 5-tert-Butyl-isoxazol-3-carbonsäure, 2-Methyl-, 2-Ethyl-, 2-Propyl-, 2-Isopropyl-, 2-Butyl-, 2-Isobutyl-, 2-sec-Butyl- und 2-tert-Butyl-oxazol-4-carbonsäure, 5-Methyl-, 5-Ethyl-, 5-Propyl-, 5-Isopropyl- und 4,5-Dimethyl-1,3-oxazol-2-carbonsäure, 5-Methyl-, 5-Ethyl-, 5-Propyl-, 5-Isopropyl-, 5-Butyl-, 5-Isobutyl-, 5-sec-Butyl-, 5-tert-Butyl- und 5-Phenyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäure, 2-Chlor-, 2-Methyl-, 2-Ethyl-, 2-Propyl-, 2-Isopropyl-, 2-Butyl-, 2-Isobutyl-, 2-sec-Butyl-, 2-tert-Butyl-, 2-Trifluormethyl-, 2-Methoxy-, 2-Ethoxy-, 2-Propoxy-, und 2-Isopropoxy-thiazol-5-carbonsäure, 2,4-Dichlor-thiazol-5-carbonsäure, 2-Methyl-4-chlor-thiazol-5-carbonsäure, 2-Methoxy-4-chlor-thiazol-5-carbonsäure, 4-Methyl-, 4-Ethyl-, 4-Propyl-, 4-Isopropyl-, 4-Butyl-, 4-Isobutyl-, 4-sec-Butyl- und 4-tert-Butyl-thiazol-2-carbonsäure, 5-Methyl-, 5-Ethyl-, 5-Propyl-, 5-Isopropyl-, 5-Butyl-, 5-Isobutyl-, 5-sec-Butyl- und 5-tert-Butyl-thiazol-2-carbonsäure.

Die Carbonsäuren der Formel (IV) sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. GB-P 1245517; DE-OS 2940189; DE-OS 3013908; Helv. Chim. Acta 27 (1944), 1437-1438; Chem. Ber. 73 (1940), 1240-1252; J. Chem. Soc. 1946, 87-91; loc. cit. 1947, 96-102; Helv. Chim. Acta 29 (1946), 1957-1959; J. Prakt. Chem. 314 (1972), 447-454; Chem. Ber. 94 (1961), 757-761).

Anstatt der Carbonsäuren der Formel (IV) werden beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) gegebenenfalls die davon abgeleiteten Carbonsäurechloride oder davon abgeleitete Alkylester (vorzugsweise Methylester oder Ethylester), Aralkylester (vorzugsweise Benzylester) oder Arylester (vorzugsweise Phenylester, in der Phenylgruppe gegebenenfalls durch Cyano, Nitro, Chlor, Fluor, Brom und/oder Methyl substituiert) als Ausgangsstoffe ("reaktionsfähige Derivate") eingesetzt.

Man erhält die Carbonsäurechloride aus den entsprechenden Carbonsäuren nach üblichen Methoden, beispielsweise durch Umsetzung mit üblichen "Chlorierungsmitteln" wie z.B. Phosgen, Oxalylchlorid oder Thionylchlorid, gegebenenfalls in Gegenwart von Reaktionshilfsmitteln, wie z.B. Pyridin, und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln, wie z.B. Chloroform oder Tetrachlormethan, bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C.

Die entsprechenden Ester der Formel (IV) können aus den entsprechenden Carbonsäurechloriden und geeigneten Alkoholen oder Phenolen nach üblichen Methoden, im allgemeinen durch Umsetzung in Gegenwart eines Säureakzeptors, wie z.B. Triethylamin oder Pyridin, und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Acetonitril, bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C erhalten werden.

Man kann die genannten Ester jedoch auch direkt aus den Carbonsäuren der Formel (IV) in Gegenwart von Kondensationshilfsmitteln, wie z.B. Dicyclohexylcarbodiimid, gegebenenfalls in Gegenwart von Reaktionshilfsmitteln, wie z.B. 4-Dimethylamino-pyridin, und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln, wie z.B. Methylenchlorid oder Chloroform, bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C erhalten.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) weiter als Ausgangsstoffe benötigten Aminosulfonylverbindungen sind durch die Formel (V) allgemein definiert.

In Formel (V) haben n, A, R² und R³ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n, A, R² und R³ angegeben wurden.

Als Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (V) seien genannt:

2-Chlor-, 2,6-Dichlor-, 2,5-Dichlor-, 2-Fluor-, 2-Brom-, 2-Cyano-, 2-Nitro-, 2-Methyl-, 2-Chlor-6-methyl-, 2-Trifluormethyl-, 2-Methoxy-, 2-Ethoxy-, 2-Methylthio-, 2-Difluor-methoxy-, 2-Trifluormethoxy-, 2-(2-Chlorethoxy)-, 2-Dimethylaminosulfonyl-, 2-Phenyl-, 2-Methoxycarbonyl-, 2-Ethoxycarbonyl-, 2-Propoxycarbonyl- und 2-Isopropoxycarbonyl-benzolsulfonsäureamid sowie (2-Chlor-phenyl)-, (2-Cyano-phenyl)-, (2-Methoxycarbonyl-phenyl)- und (2-Trifluormethoxy-phenyl)-methansulfonsäureamid.

Die Aminosulfonylverbindungen der Formel (V) sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. J. Org. Chem. 33 (1968), 2104; J. Org. Chem. 25 (1960), 1824; DE-AS 2 308 262; EP-A 23 140, 23 141, 23 422, 35 893, 48 143, 51 466, 64 322, 70 041, 44 808 und 44 809; US-P 2 929 820, 4 282 242; 4 348 220 und 4 372 778 sowie Angew. Chem. 93 (1981), 151).

Anstatt der Aminosulfonylverbindungen der Formel (V) werden beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) gegebenenfalls die davon abgeleiteten Sulfonylisocyanate ("reaktionsfähige Derivate") als Ausgangsstoffe eingesetzt. Diese Verbindungen sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. J. Org. Chem. 31 (1966), 2658-2661; EP-A 7687; EP-A 46626; EP-A 21641; EP-A 23140; EP-A 23141; EP-A 70041; EP-A 23422, EP-A 64322; EP-A 34431; EP-A 35893; EP-A 51466, EP-A 44808; EP-A

173312; DE-OS 3132944; EP-A 87780; EP-A 271780).

Zur Reaktion mit den Sulfonylisocyanaten können außer den Carbonsäuren der Formel (IV) auch deren Alkalimetallsalze, insbesondere die Lithium-, Natrium- oder Kaliumsalze, eingesetzt werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) zur Herstellung der neuen Verbindungen der Formel (I) wird vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Es kommen hierbei vorzugsweise die gleichen Verdünnungsmittel in Betracht, die oben für das erfindungsgemäße Verfahren (a) angegeben sind.

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Geeignete Reaktionshilfsmittel sind hierbei Verbindungen, mit denen Carbonsäuren in reaktionsfähige Intermediate überführt werden, die dann in situ mit nucleophilen Verbindungen, wie beispielsweise den Sulfonsäureamiden der Formel (V) zu entsprechenden Carbonsäurederivaten umgesetzt werden. Als Beispiele für derartige Reaktionshilfsmittel seien Carbonyldiimidazol und 2-Chlor-1-methyl-pyridiniumiodid genannt.

Für die Umsetzung der Carbonsäurechloride und Ester gemäß Formel (IV) mit Aminosulfonylverbindungen der Formel (V) sind auch Säureakzeptoren, wie sie oben für das erfindungsgemäße Verfahren (a) angegeben sind, als Reaktionshilfsmittel geeignet.

Die Reaktionstemperaturen können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0 °C und 150 °C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 10 °C und 100 °C.

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) werden die jeweils benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der beiden jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Reaktionen werden im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt, und das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der jeweils erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden.

Aus den erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) können gegebenenfalls Salze hergestellt werden. Man erhält solche Salze in einfacher Weise nach üblichen Salzbildungsmethoden, beispielsweise durch Lösen oder Dispergieren einer Verbindung der Formel (I) in einem geeigneten Lösungsmittel, wie z. B. Wasser, Methanol, Ethanol, Methylenchlorid oder Aceton, und Zugabe einer geeigneten Säure bzw. Base. Die Salze können dann - gegebenenfalls nach längerem Rühren - durch Einengen oder Absaugen isoliert werden.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defolianten, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewandten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich insbesondere zur selektiven Bekämpfung von dikotylen Unkräutern in Getreide sowohl im Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-
 5 Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum-
 10 erzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfractionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol
 15 sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen infrage:

z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate; als feste Trägerstoffe für Granulate kommen infrage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum-
 20 erzeugende Mittel kommen infrage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylaryl-polyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen infrage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische
 30 pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von
 35 Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder
 40 Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise Anilide, wie z.B. Diflufenican und Propanil; Arylcarbonsäuren, wie z.B. Dichlorpicolinsäure, Dicamba und Picloram; Aryloxyalkansäuren, wie z.B. 2,4 D, 2,4 DB, 2,4 DP, Fluroxypyr, MCPA, MCPP und Triclopyr; Aryloxy-phenoxy-alkansäureester, wie z.B. Diclofop-methyl, Fenoxaprop-ethyl, Fluazifop-butyl, Haloxyfop-methyl und Quizalofop-ethyl; Azino-
 45 ne, wie z.B. Chloridazon und Norflurazon; Carbamate, wie z.B. Chlorpropham, Desmedipham, Phenmedipham und Propham; Chloracetanilide, wie z.B. Alachlor, Acetochlor, Butachlor, Metazachlor, Metolachlor, Pretilachlor und Propachlor; Dinitroaniline, wie z.B. Oryzalin, Pendimethalin und Trifluralin; Diphenylether, wie z.B. Acifluorfen, Bifenox, Fluoroglycofen, Fomesafen, Halosafen, Lactofen und Oxyfluorfen; Harnstoffe, wie z.B. Chlortoluron, Diuron, Fluometuron, Isoproturon, Linuron und Methabenzthiazuron; Hydroxylamine, wie z.B. Alloxidim, Clethodim, Cycloxydim, Sethoxydim und Tralkoxydim; Imidazolinone, wie z.B. Imazetha-
 50 pyr, Imazamethabenz, Imazapyr und Imazaquin; Nitrile, wie z.B. Bromoxynil, Dichlobenil und Ioxynil; Oxyacetamide, wie z.B. Mefenacet; Sulfonylharnstoffe, wie z.B. Amidosulfuron, Bensulfuron-methyl, Chlorimuron-ethyl, Chlorsulfuron, Cinosulfuron, Metsulfuron-methyl, Nicosulfuron, Primisulfuron, Pyrazosulfuron-ethyl, Thifensulfuron-methyl, Triasulfuron und Tribenuron-methyl; Thiocarbamate, wie z.B. Butylate, Cycloate, Diallylate, EPTC, Esprocarb, Molinate, Prosulfocarb, Thiobencarb und Triallate; Triazine, wie z.B. Atrazin, Cyanazin, Simazin, Simetryne, Terbutryne und Terbutylazin; Triazinone, wie z.B. Hexazinon, Metamitron und Metribuzin; Sonstige, wie z.B. Aminotriazol, Benfuresate, Bentazone, Cinmethylin, Clomazone, Clopyralid, Difenzoquat, Dithiopyr, Ethofumesate, Fluorochloridone, Glufosinate, Glyphosate,
 55

Isoxaben, Pyridate, Quinchlorac, Quinmerac, Sulphosate und Tridiphane.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor, als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden.

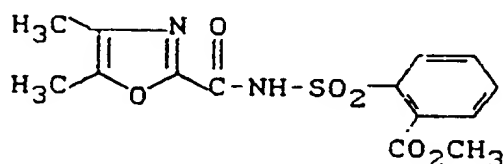
Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 10 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 50 g und 5 kg pro ha.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele:

Beispiel 1

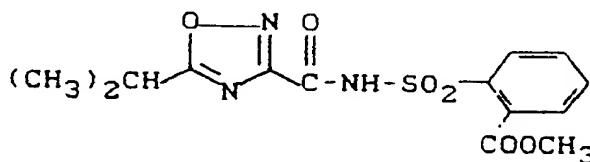


(Verfahren (a))

2,8 g (0,02 Mol) 4,5-Dimethyl-oxazol-2-carbonsäureamid und 3,4 g (0,06 Mol) Kaliumhydroxidpulver werden in 150 ml Dioxan 15 Minuten bei 40°C gerührt. Danach werden 50 ml Dioxan bei 40°C unter vermindertem Druck abdestilliert. Man kühlt die Suspension auf Raumtemperatur ab und tropft 7 g (0,027 Mol) 2-Chlorsulfonyl-benzoesäuremethylester, gelöst in 20 ml Dioxan, zu. Das Reaktionsgemisch wird 2 Tage bei Raumtemperatur gerührt, anschließend bei 40°C unter vermindertem Druck eingeeengt und der Rückstand in 50 ml 1N-Salzsäure verrührt. Die Kristalle werden abgesaugt, mit Wasser neutral gewaschen und im Exsikkator getrocknet.

Man erhält 6,3 g (93% der Theorie) N-(2-Methoxycarbonylphenylsulfonyl)-4,5-dimethyl-oxazol-2-carbonsäureamid in Form farbloser Kristalle vom Schmelzpunkt 114°C.

Beispiel 2



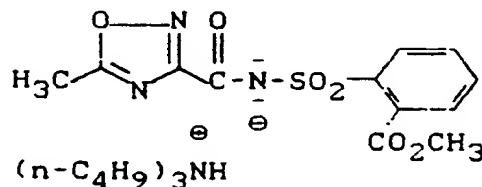
(Verfahren (b))

Eine Mischung aus 5,3 g (0,03 Mol) 5-Isopropyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäure-natriumsalz, 7,2 g (0,03 Mol) 2-Methoxycarbonyl-phenylsulfonylisocyanat, 0,15 g (0,0012 Mol) 4-Dimethylamino-pyridin und 150 ml Toluol wird 4 Stunden unter Rückfluß erhitzt. Dann wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand mit 150 ml 10%-iger Kaliumcarbonat-Lösung verrührt und abgesaugt. Der Nutschkuchen wird mit 100 ml

1N-Salzsäure verrührt und dreimal mit je 50 ml Methylenchlorid extrahiert. Die vereinigten organischen Extraktionslösungen werden mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand mit Diethylether verrührt und das kristalline Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 2,1 g (20% der Theorie) N-(2-Methoxycarbonylphenylsulfonyl)-5-isopropyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäureamid vom Schmelzpunkt 107°C.

Beispiel 3



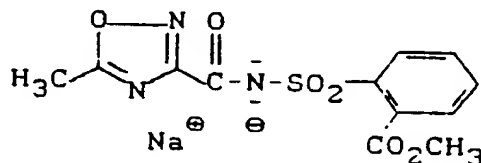
(Salzbildung)

3,25 g (0,01 Mol) N-(2-Methoxycarbonylphenyl-sulfonyl)-5-methyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäureamid und 1,85 g (0,01 Mol) Tributylamin werden in 50 ml Methanol bei Raumtemperatur gerührt, bis eine klare Lösung entstanden ist. Man destilliert das Methanol bei 40°C unter vermindertem Druck ab. Es verbleiben 5,0 g (98% der Theorie) des Tributylammoniumsalzes der eingesetzten Verbindung als farbloses Öl.

¹H-NMR (CDCl₃) δ-Werte:

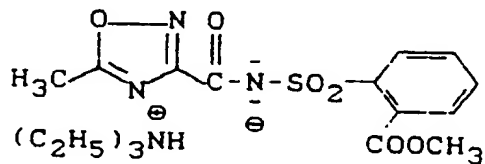
0,92 (t, 3H); 1,30-1,39 (m, 6H); 1,59-1,67 (m, 6H); 2,59 (s, 3H); 3,08-3,12 (m, 6H); 3,88 (s, 3H); 7,43-7,51 (m, 3H); 8,17-8,20 (m, 1H)

Analog Beispiel 3 erhält man auch das entsprechende Natriumsalz (3a),



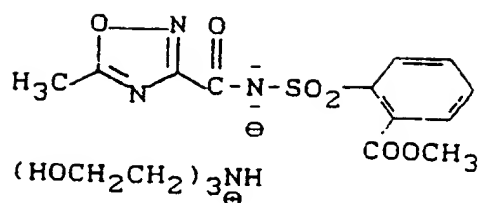
Fp.: >100°C (Zersetzung)

das entsprechende Triethylammoniumsalz (3b)



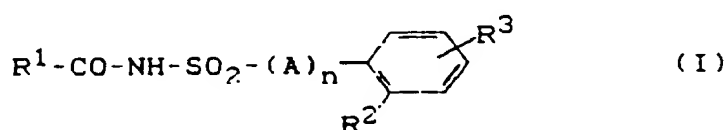
Fp.: 128°C

und das entsprechende Tris-(2-hydroxyethyl)-ammoniumsalz (3c)



(Öl)

Analog zu den Beispielen 1 und 2 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt werden.

**Tabelle 1:** Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 4 | | - | 0 | CO ₂ CH(CH ₃) ₂ | - | 108 |
| 5 | | CH ₂ | 1 | COOCH ₃ | - | 132 |
| 6 | | CH ₂ | 1 | OCF ₃ | - | 214 |
| 7 | | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | 150 |
| 8 | | - | 0 | COOC ₃ H ₇ | - | 144 |
| 9 | | - | 0 | COOCH ₃ | - | 146 |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

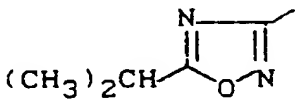
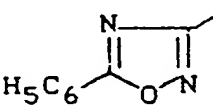
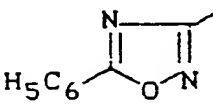
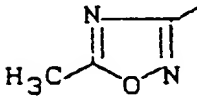
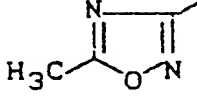
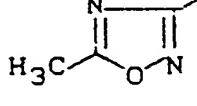
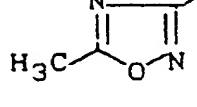
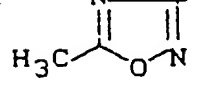
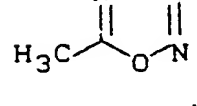
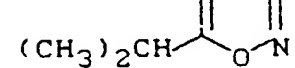
| | | | | | | |
|----|---|---|---|---|---|-----|
| 10 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | 170 |
| 11 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | 184 |
| 12 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | 208 |
| 13 |  | 0 | 1 | CH ₃ | - | 178 |
| 14 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | 130 |
| 15 |  | - | 0 | SC ₃ H ₇ | - | 121 |
| 16 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | 166 |
| 17 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | 165 |
| 18 |  | - | 0 | SOC ₃ H ₇ | - | 162 |
| 19 |  | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | 84 |

Tabelle 1 - Fortsetzung

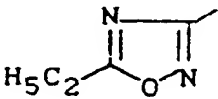
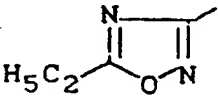
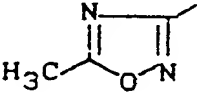
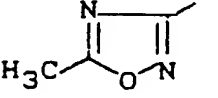
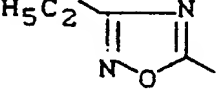
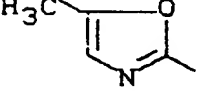
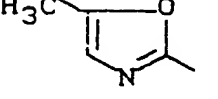
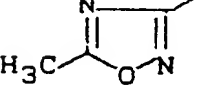
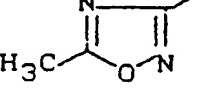
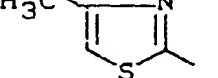
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 20 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | 121 |
| 21 |  | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | 84 |
| 22 |  | - | 0 | COOCH ₂ CH ₂ Cl | - | 93 |
| 23 |  | - | 0 | COOCH ₂ CH ₂ OCH ₃ | - | 129 |
| 24 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | 118 |
| 25 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | 122 |
| 26 |  | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | 116 |
| 27 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | 161 |
| 28 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | 165 |
| 29 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | 121 |

Tabelle 1 - Fortsetzung

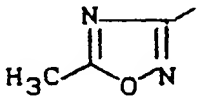
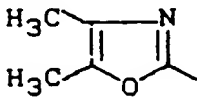
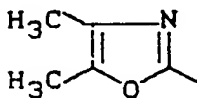
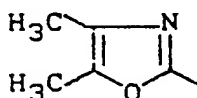
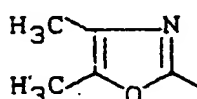
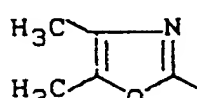
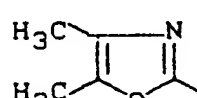
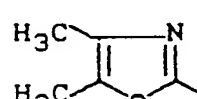
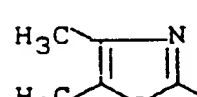
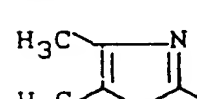
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|----------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 30 |  | - | 0 | COOH | - | 178 |
| 31 |  | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | 108 |
| 32 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | 174 |
| 33 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | 124 |
| 34 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | 140 |
| 35 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | 110 |
| 36 |  | - | 0 | F | - | 104 |
| 37 |  | - | 0 | Cl | (3-)Cl | 125 |
| 38 |  | - | 0 | Cl | (5-)CH ₃ | 191 |
| 39 |  | - | 0 | SC ₃ H ₇ | - | 121 |

Tabelle 1 - Fortsetzung

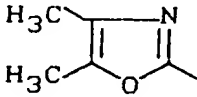
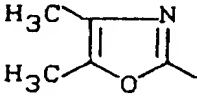
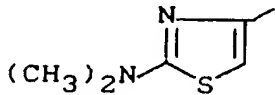
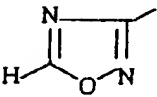
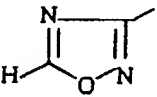
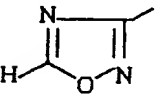
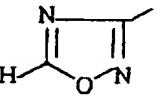
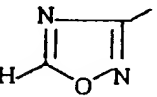
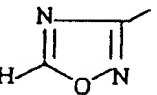
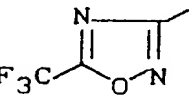
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---------------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 40 |  | - | 0 | COOCH ₂ CH ₂ Cl | - | 115 |
| 41 |  | CH ₂ | 1 | COOCH ₃ | - | 113 |
| 42 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | |
| 43 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | 148 |
| 44 |  | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | |
| 45 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | |
| 46 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 47 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
| 48 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | |
| 49 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

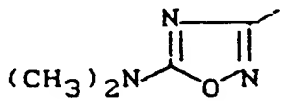
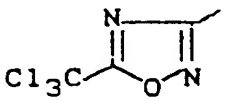
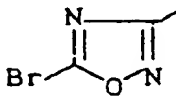
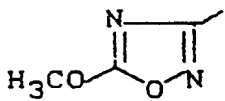
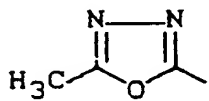
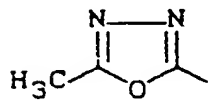
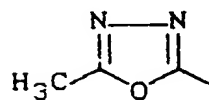
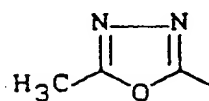
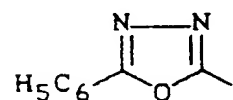
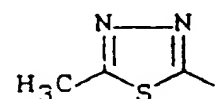
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|----------------------------------|-------------------------------------|---------------------------|
| 50 |  | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | |
| 51 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 52 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | |
| 53 |  | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | |
| 54 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | |
| 55 |  | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | |
| 56 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 57 |  | - | 0 | Cl | - | 179° C (Zers.) |
| 58 |  | - | 0 | Cl | - | 195° C (Zers.) |
| 59 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

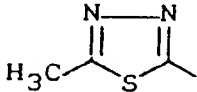
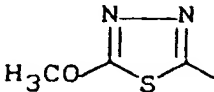
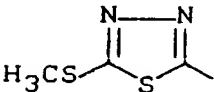
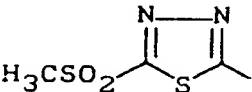
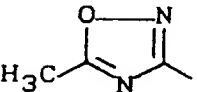
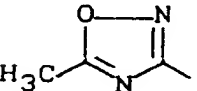
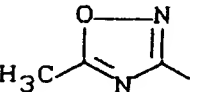
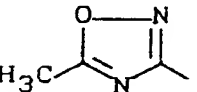
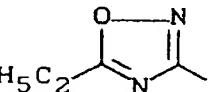
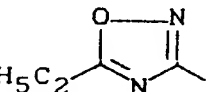
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|-----------------------------------|-------------------------------------|---------------------------|
| 60 |  | - | 0 | COOC ₂ H ₅ | - | |
| 61 |  | - | 0 | COOCH ₃ | - | |
| 62 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 63 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
| 64 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | |
| 65 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
| 66 |  | - | 0 | O-C ₃ H _{7-n} | - | 115 |
| 67 |  | - | 0 | O-C ₃ H _{7-i} | - | 76 |
| 68 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | |
| 69 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schm lz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

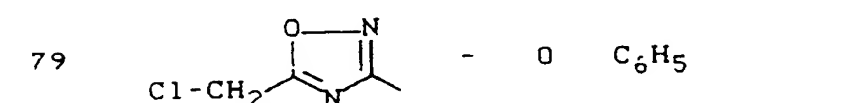
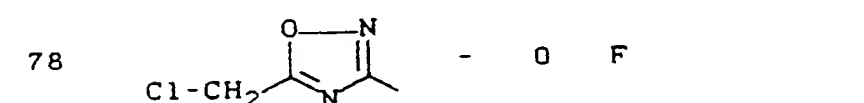
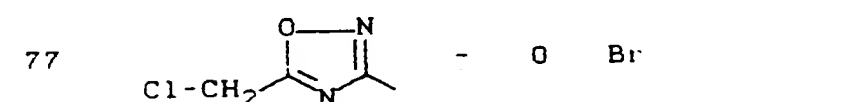
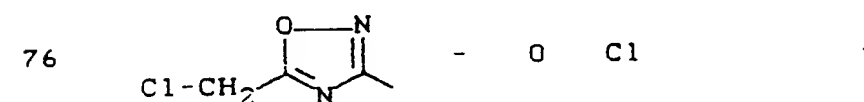
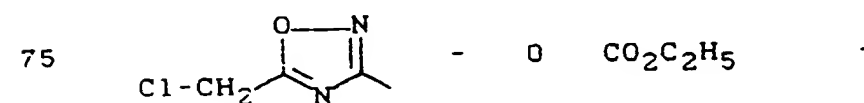
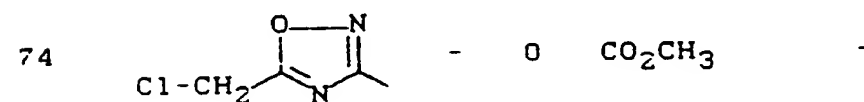
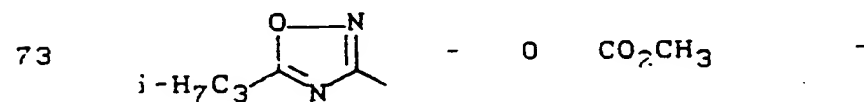
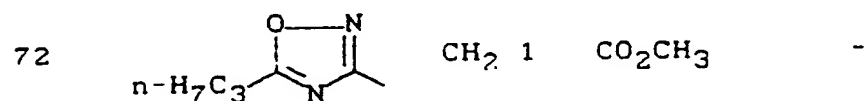


Tabelle 1 - Fortsetzung

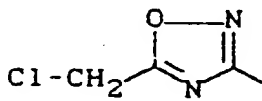
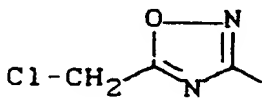
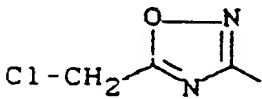
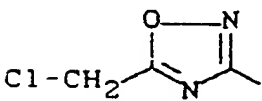
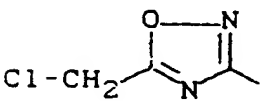
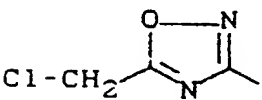
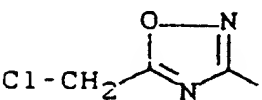
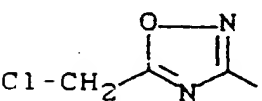
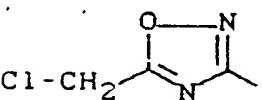
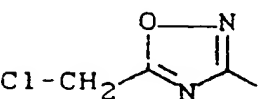
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 80 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 81 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 82 |  | - | 0 | OC ₃ H ₇ | - | - |
| 83 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 84 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 85 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 86 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₂ CH ₂ Cl | - | - |
| 87 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 88 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 89 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

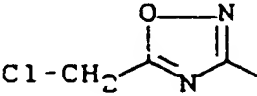
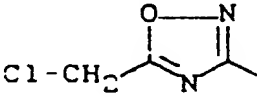
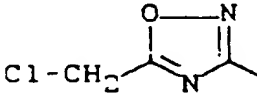
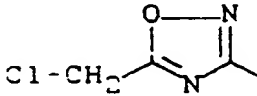
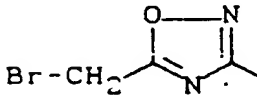
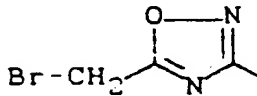
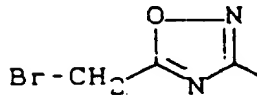
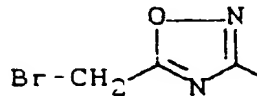
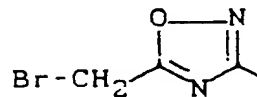
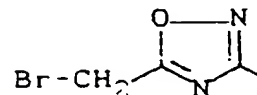
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 90 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 91 |  | CH ₂ | 1 | OCF ₃ | - | - |
| 92 |  | 0 | 1 | CH ₃ | - | - |
| 93 |  | - | 0 | CH ₃ | - | - |
| 94 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 95 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 96 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 97 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 98 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 99 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

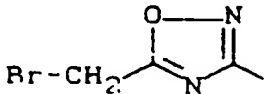
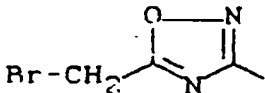
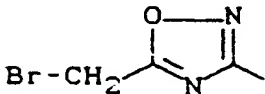
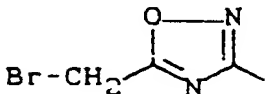
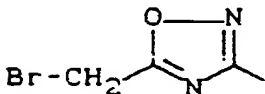
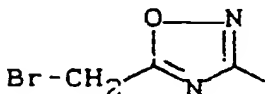
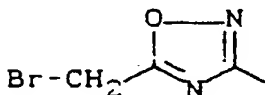
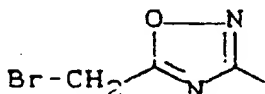
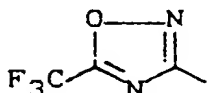
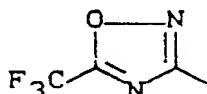
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 100 |  | - | 0 | OC ₃ H ₇ | - | - |
| 101 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 102 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 103 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 104 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 105 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 106 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 107 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 108 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 109 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|

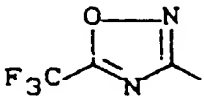
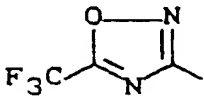
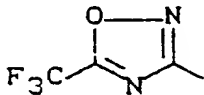
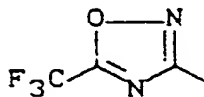
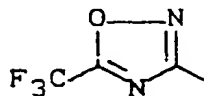
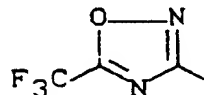
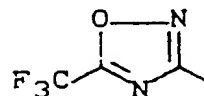
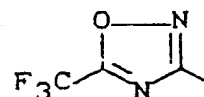
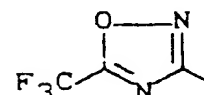
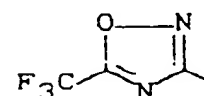
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|--|--------|---|
| 110 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 111 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 112 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 113 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 114 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 115 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 116 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 117 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 118 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | - |
| 119 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

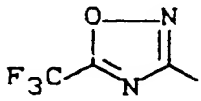
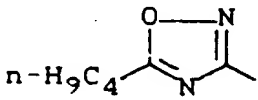
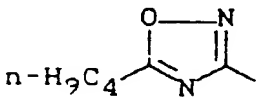
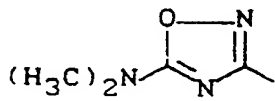
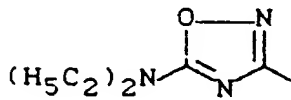
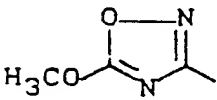
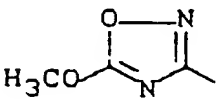
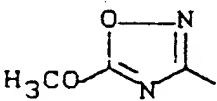
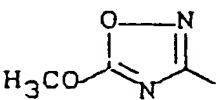
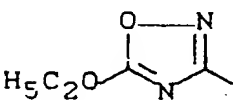
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 120 |  | - | 0 | CH ₃ | - | - |
| 121 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 122 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 123 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 124 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 125 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 126 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 127 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 128 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 129 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 130 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 131 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 132 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 133 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 134 | | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 135 | | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 136 | | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 137 | | - | 0 | OC ₃ H _{7-n} | - | - |
| 138 | | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 139 | | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

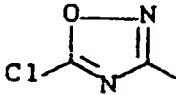
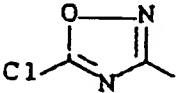
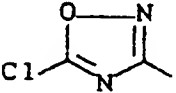
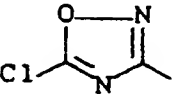
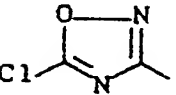
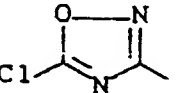
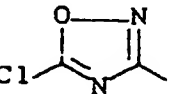
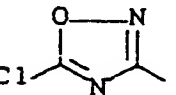
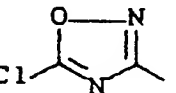
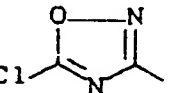
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 140 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | - |
| 141 |  | - | 0 | SO ₂ CH ₃ | - | - |
| 142 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 143 |  | - | 0 | Br | - | - |
| 144 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 145 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 146 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 147 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 148 |  | - | 0 | CN | - | - |
| 149 |  | CH ₂ | 1 | OCHF ₂ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|

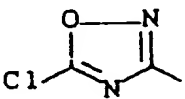
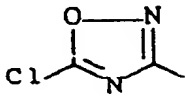
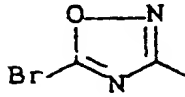
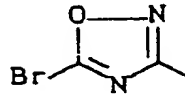
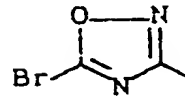
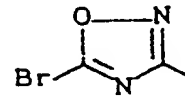
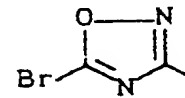
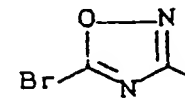
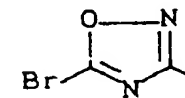
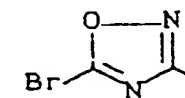
| | | | | | | |
|-----|---|-----------------|---|--|--------|---|
| 150 |  | - | 0 | CH ₃ | - | - |
| 151 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 152 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 153 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 154 |  | - | 0 | CO ₂ C ₃ H _{7-i} | - | - |
| 155 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₂ CH ₂ OCH ₃ | - | - |
| 156 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 157 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 158 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 159 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

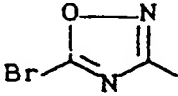
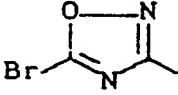
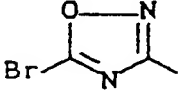
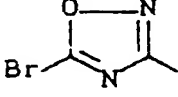
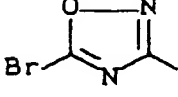
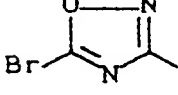
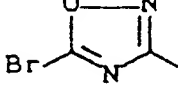
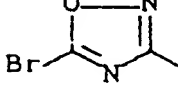
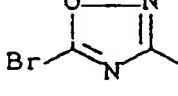
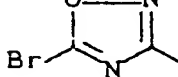
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|----------------------------------|-------------------------------------|---------------------------|
| 160 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 161 |  | - | 0 | OC ₃ H ₇ | - | - |
| 162 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 163 |  | CH ₂ | 1 | Cl | - | - |
| 164 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 165 |  | - | 0 | Br | - | - |
| 166 |  | - | 0 | F | - | - |
| 167 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 168 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 169 |  | - | 0 | SC ₃ H _{7-n} | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

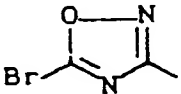
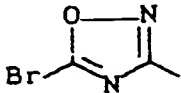
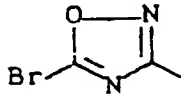
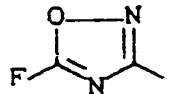
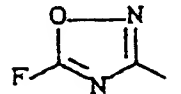
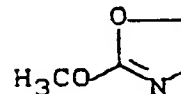
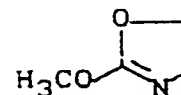
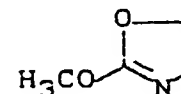
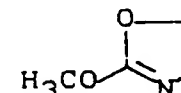
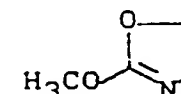
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 170 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 171 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 172 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃)OCH ₃ | - | - |
| 173 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 174 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 175 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 176 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 177 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 178 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 179 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

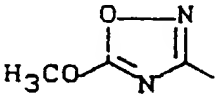
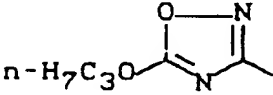
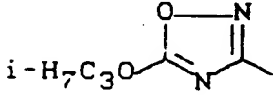
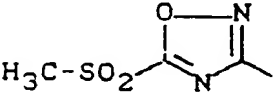
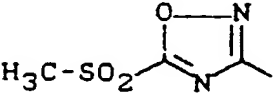
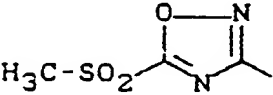
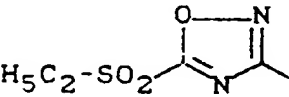
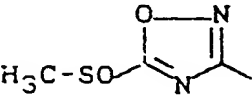
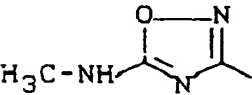
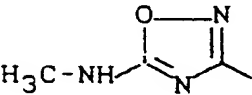
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|-------------------------------------|---------------------------|
| 180 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 181 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 182 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 183 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 184 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 185 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | (5)-Cl | - |
| 186 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 187 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 188 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 189 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

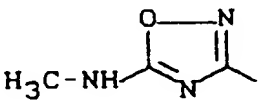
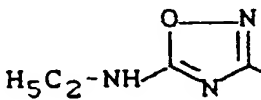
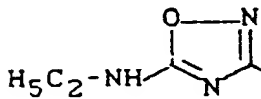
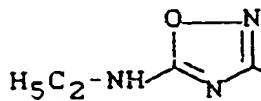
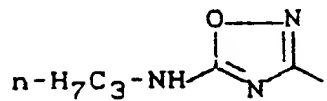
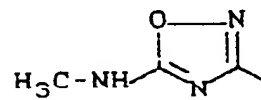
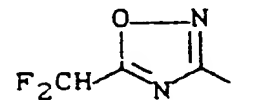
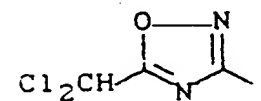
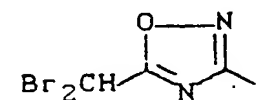
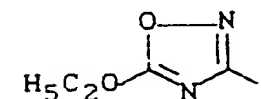
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 190 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 191 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 192 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 193 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 194 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 195 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 196 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 197 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 198 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 199 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

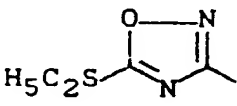
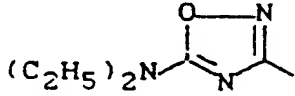
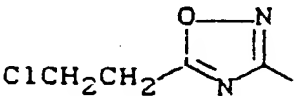
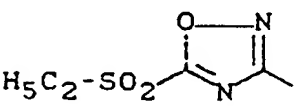
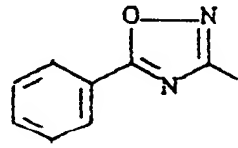
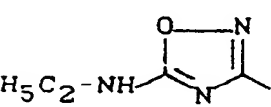
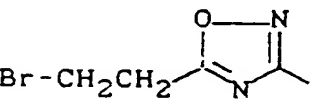
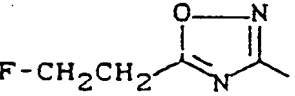
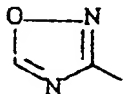
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 200 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 201 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 202 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 203 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 204 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6-)Cl | - |
| 205 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 206 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 207 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 208 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

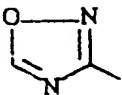
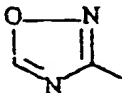
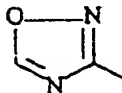
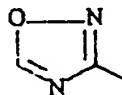
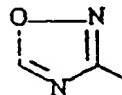
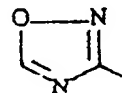
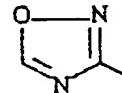
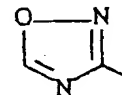
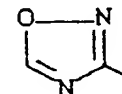
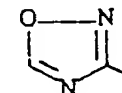
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 209 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 210 |  | - | 0 | CO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 211 |  | - | 0 | CO ₂ C ₃ H _{7-i} | - | - |
| 212 |  | CH ₂ | 1 | OCF ₃ | - | - |
| 213 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 214 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 215 |  | - | 0 | Br | - | - |
| 216 |  | - | 0 | F | - | - |
| 217 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 218 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

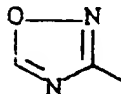
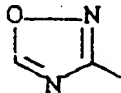
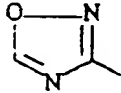
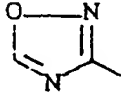
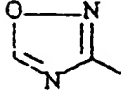
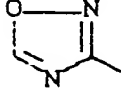
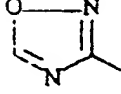
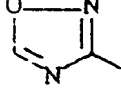
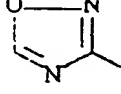
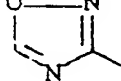
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 219 |  | CH ₂ | 1 | OCH ₃ | - | - |
| 220 |  | CH ₂ | 1 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 221 |  | - | 0 | CF ₃ | - | - |
| 222 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 223 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 224 |  | - | 0 | CH ₃ | - | - |
| 225 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 226 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 227 |  | - | 0 | SOCH ₃ | - | - |
| 228 |  | - | 0 | SO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

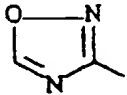
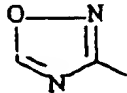
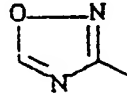
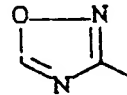
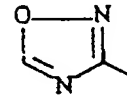
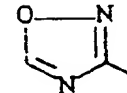
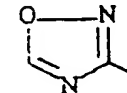
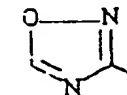
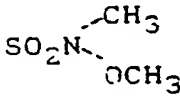
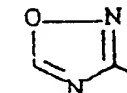
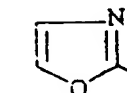
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 229 |  | - | 0 | Cl | (6-)F | - |
| 230 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 231 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 232 |  | - | 0 | SC ₃ H _{7-n} | - | - |
| 233 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 234 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 235 |  | CH ₂ | 1 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 236 |  | - | 0 |  | - | - |
| 237 |  | CH ₂ | 1 | CH ₃ | - | - |
| 238 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

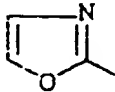
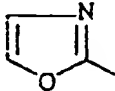
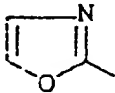
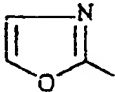
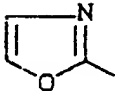
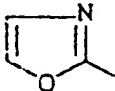
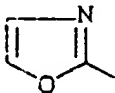
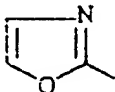
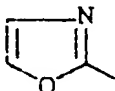
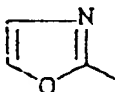
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|-------------------------------------|---------------------------|
| 239 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | |
| 240 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | |
| 241 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 242 |  | - | 0 | Cl | - | |
| 243 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | |
| 244 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | |
| 245 |  | - | 0 | SC ₃ H ₇ | - | |
| 246 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | |
| 247 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 248 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- lion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

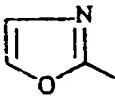
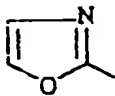
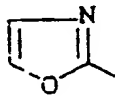
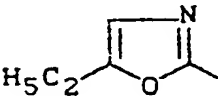
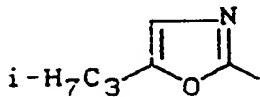
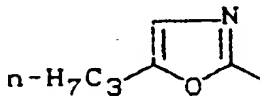
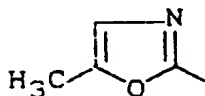
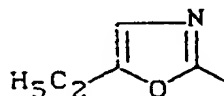
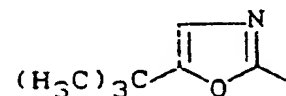
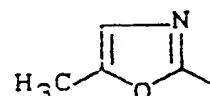
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|---|
| 249 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 250 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 251 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 252 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 253 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 254 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 255 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 256 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 257 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | - |
| 258 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

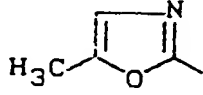
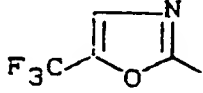
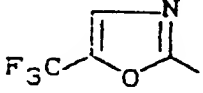
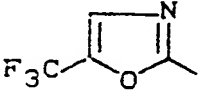
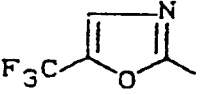
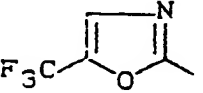
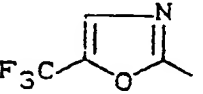
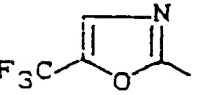
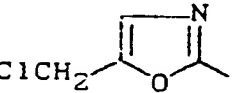
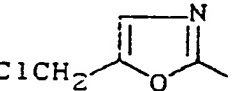
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 259 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 260 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 261 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 262 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 263 |  | - | 0 | OEt | - | - |
| 264 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 265 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 266 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 267 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 268 |  | - | 0 | CO ₂ C ₃ H _{7-i} | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

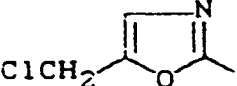
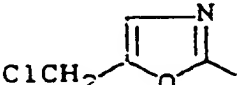
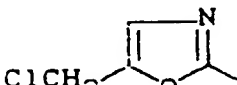
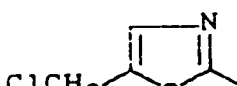
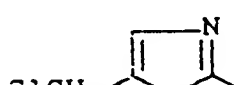
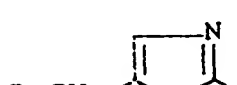


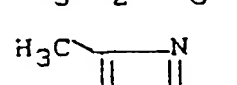
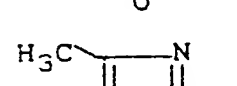
| | | | | | | |
|-----|---|-----------------|---|---|---------|--|
| 269 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
| 270 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | |
| 271 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
| 272 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 273 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | |
| 274 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 275 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 276 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 277 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 278 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6-)-Cl | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

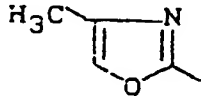
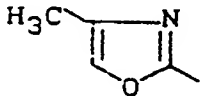
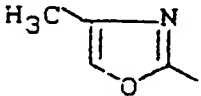
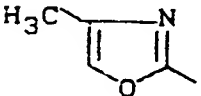
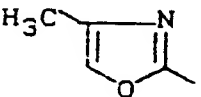



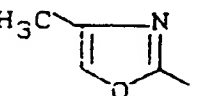

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- lion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 279 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 280 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 281 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 282 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 283 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 284 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 285 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 286 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 287 |  | - | 0 | SO ₂ CH ₃ | - | - |
| 288 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

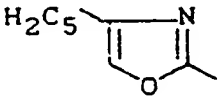
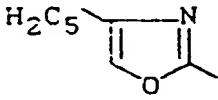
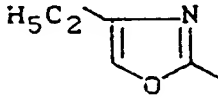
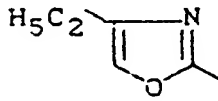
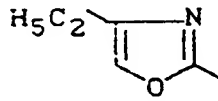
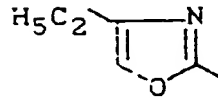
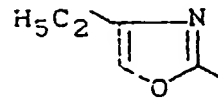
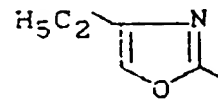
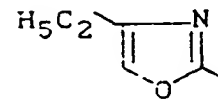
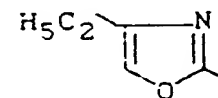
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|---|
| 289 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 290 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 291 |  | - | 0 | F | - | - |
| 292 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 293 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 294 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 295 |  | - | 0 | OC ₃ H ₇ | - | - |
| 296 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 297 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 298 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

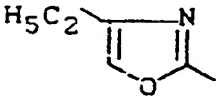
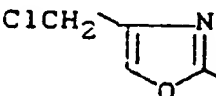
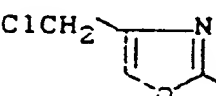
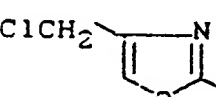
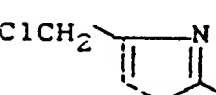
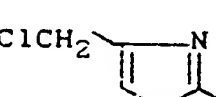
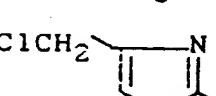
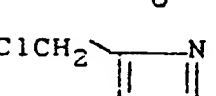
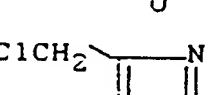
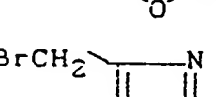
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 299 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 300 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 301 |  | - | 0 | CF ₃ | - | - |
| 302 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 303 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 304 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 305 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 306 |  | - | 0 | SO-C ₂ H ₅ | - | - |
| 307 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 308 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

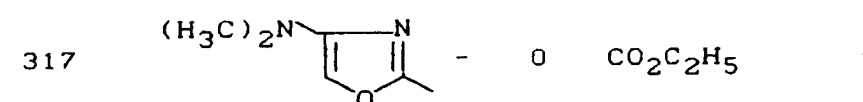
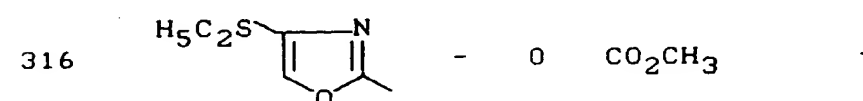
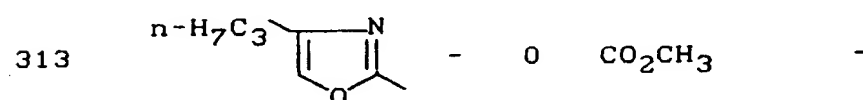
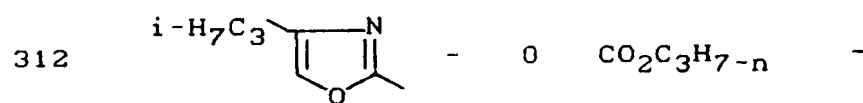
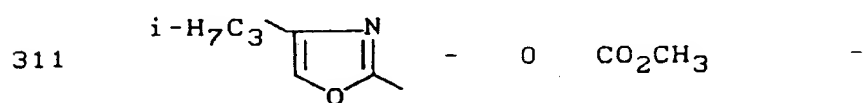
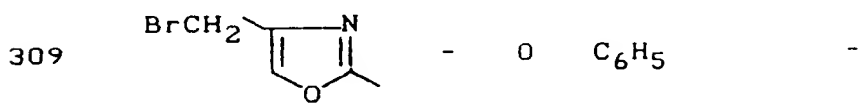


Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

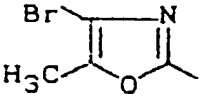
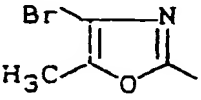
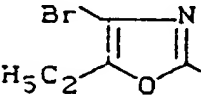
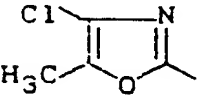
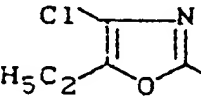
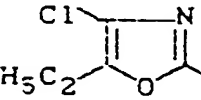
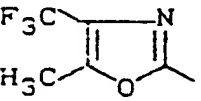
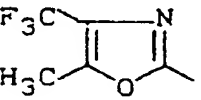
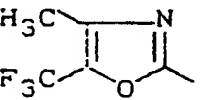
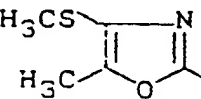
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|--|--------|--|
| 319 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 320 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
| 321 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃)(OCH ₃) | - | |
| 322 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 323 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
| 324 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
| 325 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 326 |  | - | 0 | Br | - | |
| 327 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 328 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

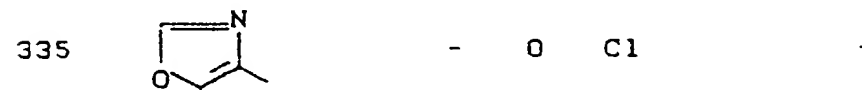
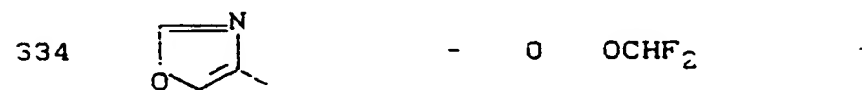
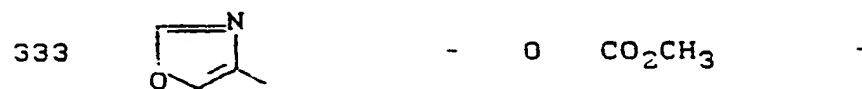


Tabelle 1 - Fortsetzung

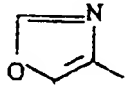
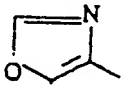
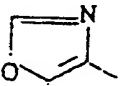
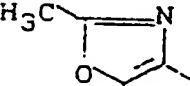


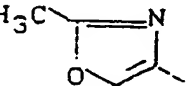
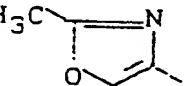
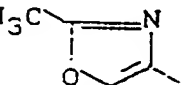
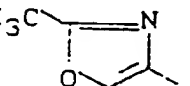
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- lion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 339 |  | - | 0 | CF ₃ | - | - |
| 340 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 341 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 342 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 343 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 344 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 345 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 346 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 347 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 348 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

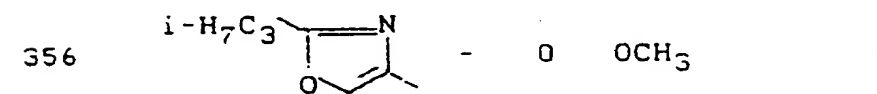
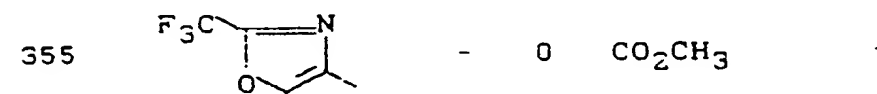
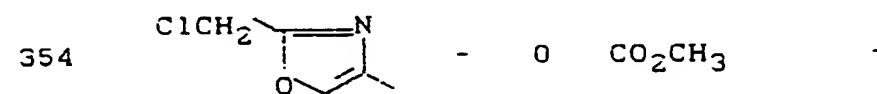
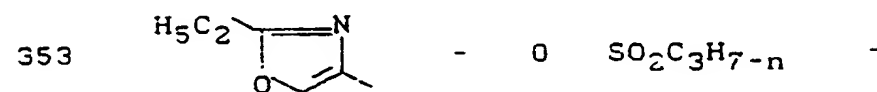
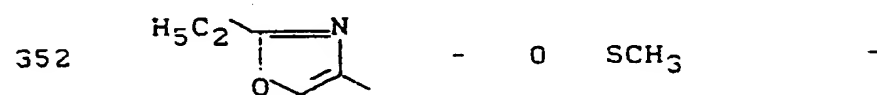
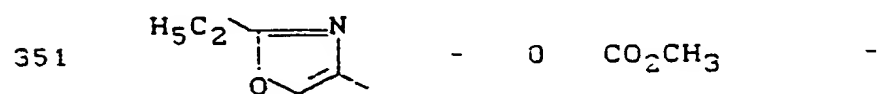


Tabelle 1 - Fortsetzung

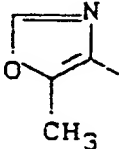
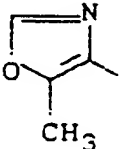
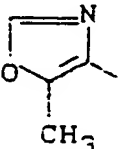
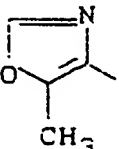
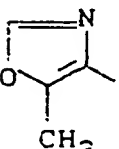
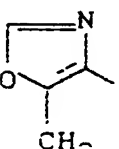
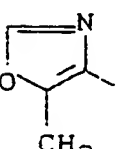
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|-------------------------------------|---------------------------|
| 358 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 359 |  | - | 0 | OC ₃ H _{7-i} | - | - |
| 360 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 361 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 362 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 363 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 364 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

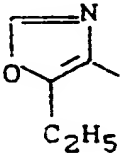
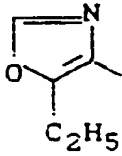
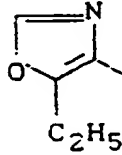
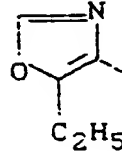
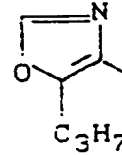
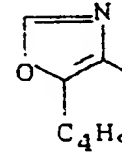
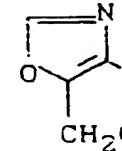
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|--------|---|
| 365 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 366 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |
| 367 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 368 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 369 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 370 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 371 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

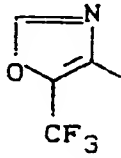
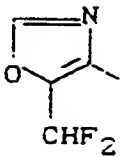
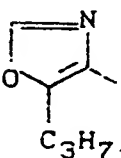
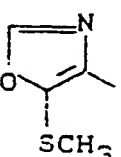
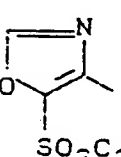
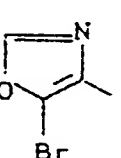
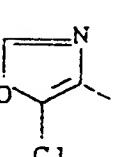
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 372 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₂ CH ₂ Cl | - | - |
| 373 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 374 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | - |
| 375 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 376 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 377 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 378 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|

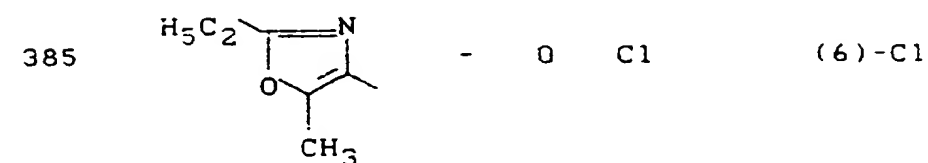
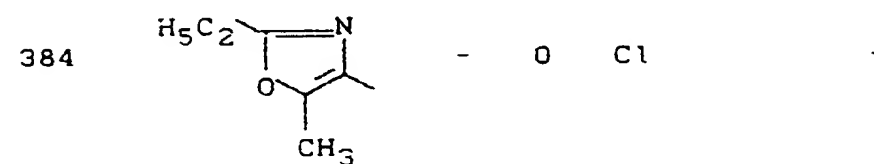


Tabelle 1 - Fortsetzung

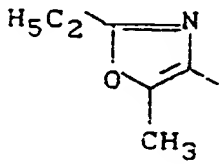
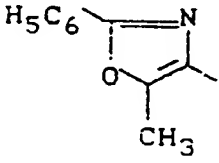
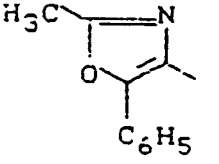
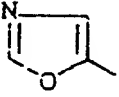
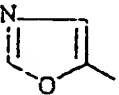
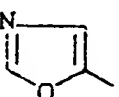
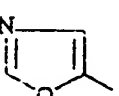
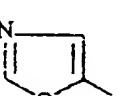
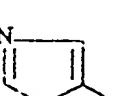
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 386 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
| 387 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 388 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 389 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 390 |  | - | 0 | CF ₃ | - | |
| 391 |  | - | 0 | OC ₃ H ₇ | - | |
| 392 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | |
| 393 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-i} | - | |
| 394 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

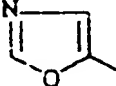
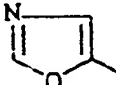
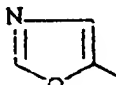

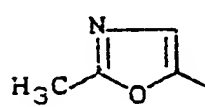
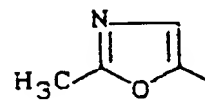
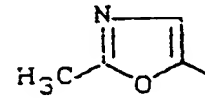
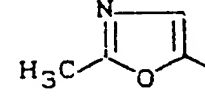
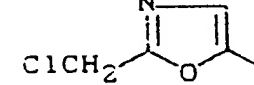
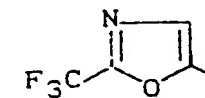
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|-----------------------------------|--------|---|
| 395 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 396 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 397 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 398 |  | - | 0 | F | - | - |
| 399 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 400 |  | - | 0 | Br | - | - |
| 401 |  | - | 0 | OC ₃ H ₇ -i | - | - |
| 402 |  | - | 0 | SC ₃ H ₇ -i | - | - |
| 403 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 404 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

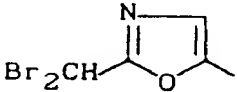
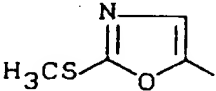
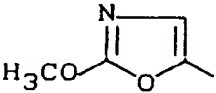
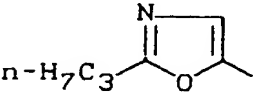
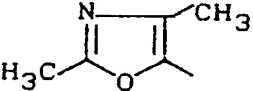
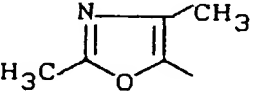
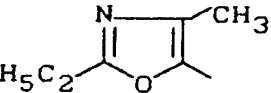
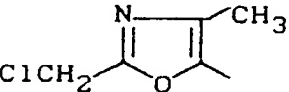
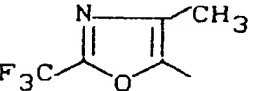
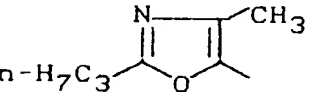
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|-------------------------------------|---------------------------|
| 405 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 406 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 407 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 408 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | |
| 409 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 195 |
| 410 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 411 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
| 412 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | |
| 413 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | |
| 414 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|

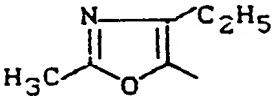
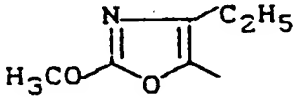
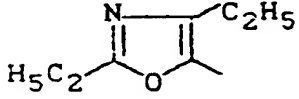
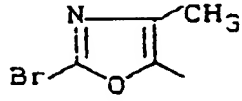
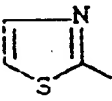
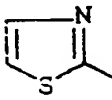
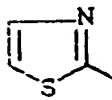
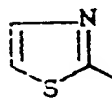
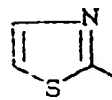
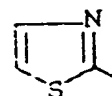
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|--|---------------------|---|
| 415 |  | - | 0 | CH ₃ | - | - |
| 416 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 417 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 418 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 419 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 420 |  | - | 0 | CO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 421 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 422 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 423 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 424 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

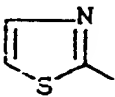
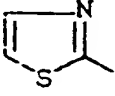
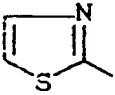
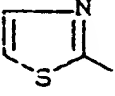
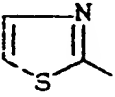
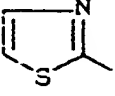
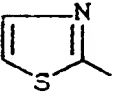
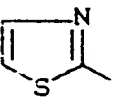
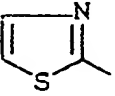
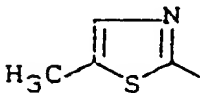
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|----|---|---------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 425 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 426 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 427 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 428 |  | - | 0 | SOC ₃ H ₇ | - | - |
| 429 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | - |
| 430 |  | - | 0 | SO ₂ CH ₃ | - | - |
| 431 |  | - | 0 | Br | - | - |
| 432 |  | - | 0 | CF ₃ | - | - |
| 433 |  | NH | 1 | Cl | - | - |
| 434 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|----|--------|--|
| 435 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | |
|-----|---|---|---|----|--------|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|----------------------------------|---|--|
| 436 |  | - | 0 | OC ₃ H _{7-n} | - | |
|-----|---|---|---|----------------------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|------------------|---|--|
| 437 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
|-----|---|---|---|------------------|---|--|

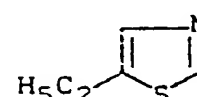
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|--|
| 438 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|--|---|---|---------------------------------|---|--|
| 439 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
|-----|--|---|---|---------------------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|--|
| 440 |  | - | 0 | CO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | |
|-----|---|---|---|---|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|--------|--|
| 441 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|--------|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|--------|--|
| 442 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|--------|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|------------------|---|--|
| 443 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
|-----|---|---|---|------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|--|
| 444 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|--|

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|---|-------------------------------------|---------------------------|
| 445 | | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 446 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 447 | | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 448 | | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 449 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 450 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 451 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 452 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 453 | | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 454 | | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

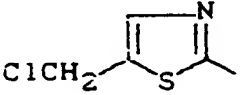
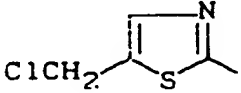
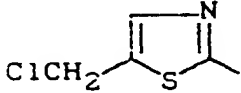
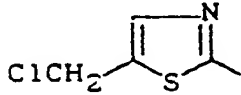
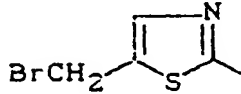
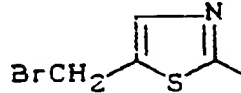
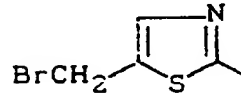
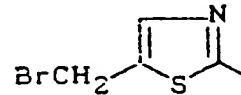
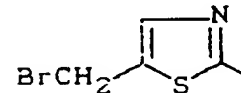
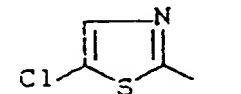
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|----------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 455 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 456 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 457 |  | - | 0 | SC ₃ H _{7-n} | - | - |
| 458 |  | - | 0 | Br | - | - |
| 459 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 460 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 461 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 462 |  | - | 0 | CF ₃ | - | - |
| 463 |  | - | 0 | SC ₃ H _{7-i} | - | - |
| 464 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

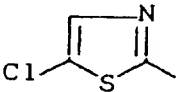
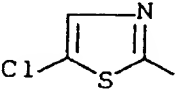
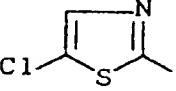
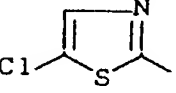
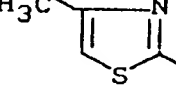
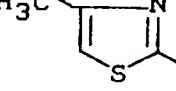
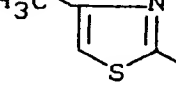
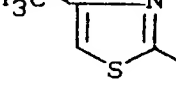
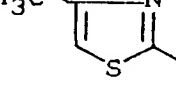
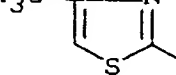
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|-------------------------------------|---------------------------|
| 465 |  | - | 0 | CH ₃ | - | - |
| 466 |  | 0 | 1 | CH ₃ | - | - |
| 467 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 468 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 469 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 470 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 471 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 472 |  | - | 0 | OC ₃ H _{7-i} | - | - |
| 473 |  | - | 0 | Cl | - | 157 |
| 474 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|

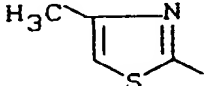
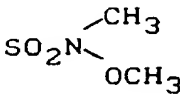
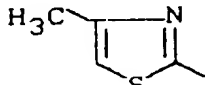
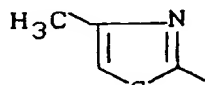
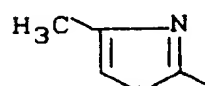
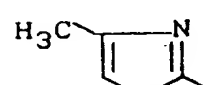
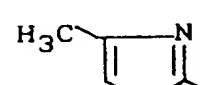
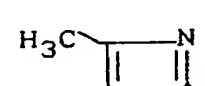
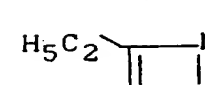
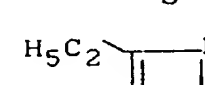
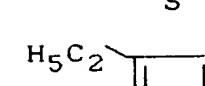
| | | | | | | |
|-----|---|-----------------|---|---|--------|-----|
| 475 |  | - | 0 |  | - | |
| 476 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | 189 |
| 477 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | |
| 478 |  | - | 0 | SO ₂ CH ₃ | - | |
| 479 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | 172 |
| 480 |  | - | 0 | CF ₃ | - | |
| 481 |  | - | 0 | CH ₃ | - | |
| 482 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 483 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
| 484 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|----|---|---------------------------------|-------------------------------------|---------------------------|
| 485 | | NH | 1 | Cl | - | - |
| 486 | | - | 0 | Cl | - | - |
| 487 | | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 488 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 489 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 490 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 491 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 492 | | - | 0 | CF ₃ | - | - |
| 493 | | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 494 | | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

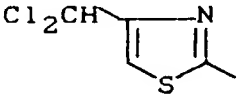
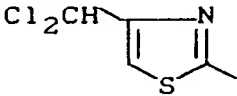
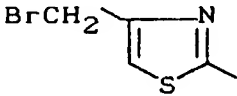
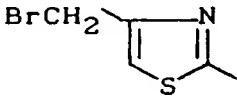
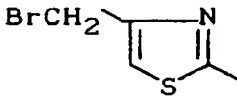
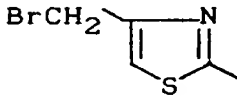
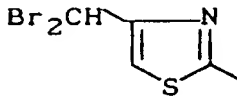
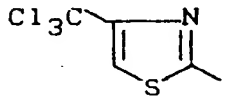
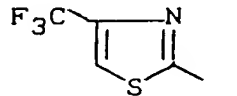
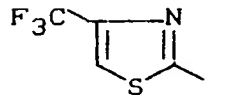
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 495 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 496 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 497 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 498 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 499 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 500 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 501 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 502 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 503 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 504 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|---|-------------------------------------|---------------------------|
| 505 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 506 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 507 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 508 | | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 509 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 510 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 511 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 512 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 513 | | - | 0 | CO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 514 | | - | 0 | Cl | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

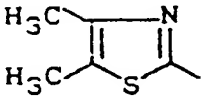
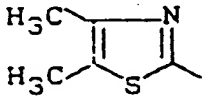
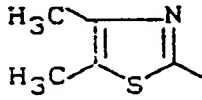
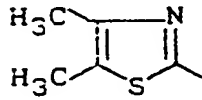
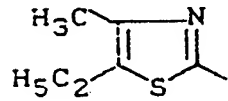
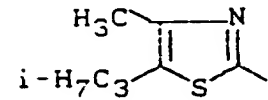
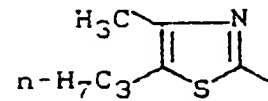
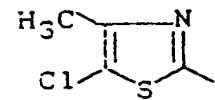
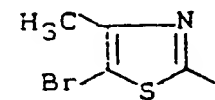
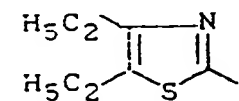
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|--------|---|
| 515 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 516 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 517 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 518 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 519 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 520 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 521 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 522 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 523 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 524 |  | - | 0 | SO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

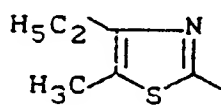
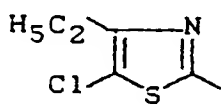
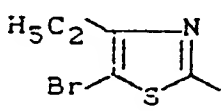
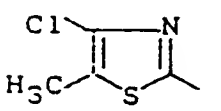
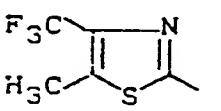
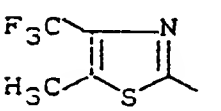
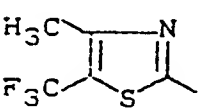
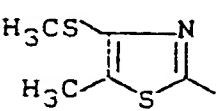
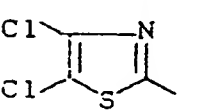
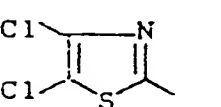
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|--|--------|--|
| 525 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 526 |  | - | 0 | Br | - | |
| 527 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₂ CH ₂ Cl | - | |
| 528 |  | - | 0 | CF ₃ | - | |
| 529 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 530 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 531 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 532 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | |
| 533 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 534 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| 5 | 2sp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|---|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|---|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

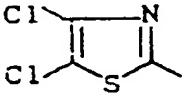
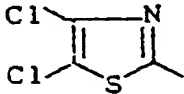
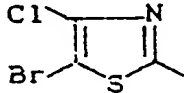
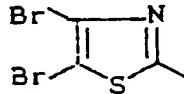
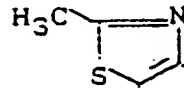
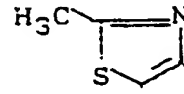
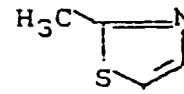
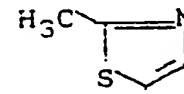
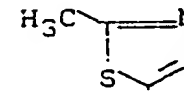
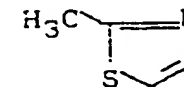
| | | | | | | | |
|----|-----|---|---|---|---|--------|--|
| 10 | 535 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 15 | 536 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
| 20 | 537 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | |
| 25 | 538 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 30 | 539 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 35 | 540 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
| 40 | 541 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 45 | 542 |  | - | 0 | OCH ₂ CH ₂ Cl | - | |
| 50 | 543 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
| 55 | 544 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

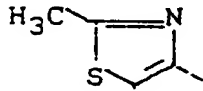


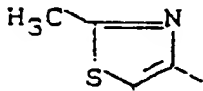
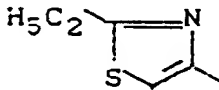
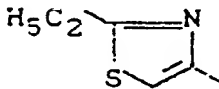
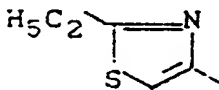
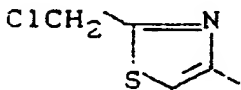
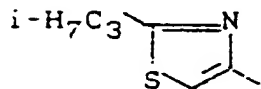
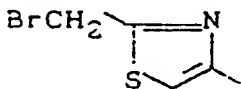
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---|-------------------------------------|---------------------------|
| 545 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 546 |  | - | 0 | Br | - | - |
| 547 |  | - | 0 | SOC ₃ H _{7-n} | - | - |
| 548 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 549 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 550 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 551 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 552 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 553 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 554 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

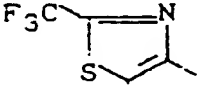
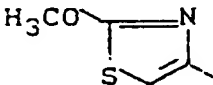
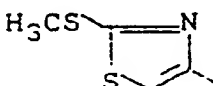
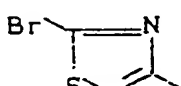
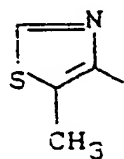
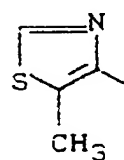
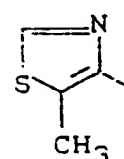
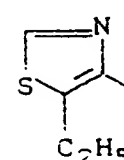
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|--------|---|
| 555 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 556 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 557 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 558 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 559 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 560 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 561 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 562 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

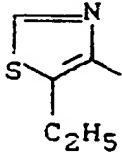
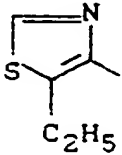
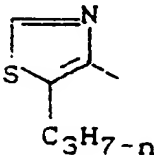
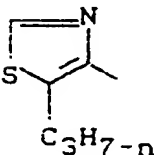
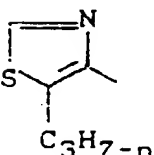
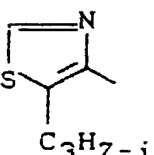

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 563 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 564 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 565 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 566 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 567 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 568 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 569 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|

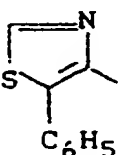
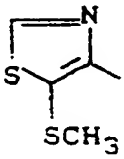
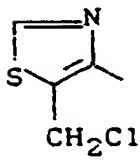
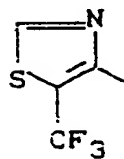
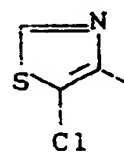
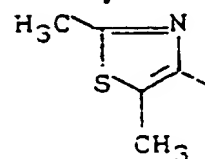
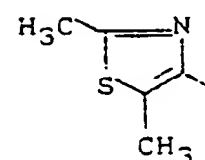
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|--------|---|
| 570 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 571 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 572 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 573 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 574 |  | - | 0 | CO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 575 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 576 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

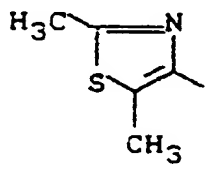
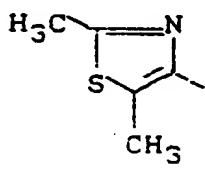
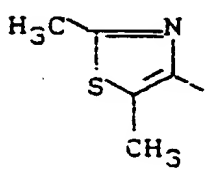
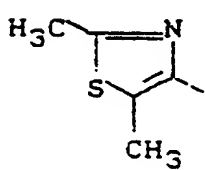
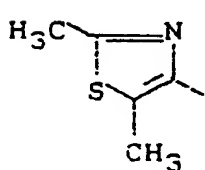
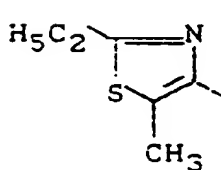
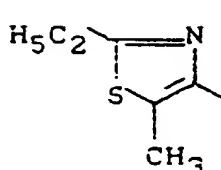
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 577 |  | - | 0 | F | - | - |
| 578 |  | CH ₂ | 1 | Cl | - | - |
| 579 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 580 |  | - | 0 | SC ₃ H _{7-i} | - | - |
| 581 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 582 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 583 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₂ CH ₂ OCH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

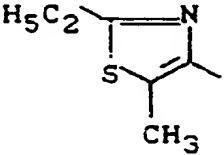
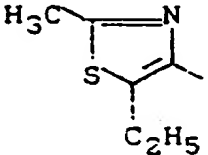
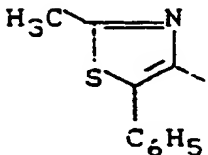
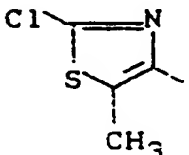
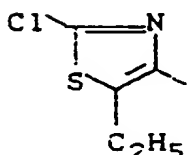
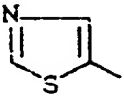
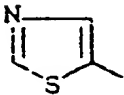
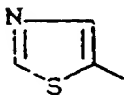
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|--------|--|
| 584 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
| 585 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | |
| 586 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 587 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 588 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
| 589 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 590 |  | - | 0 | CF ₃ | - | |
| 591 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

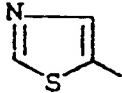
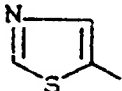
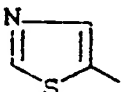
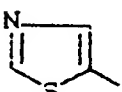
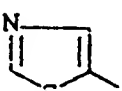


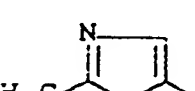
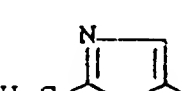
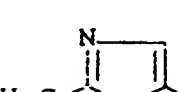
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 592 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 593 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 594 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 595 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 596 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 597 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 598 |  | - | 0 | F | - | - |
| 599 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 600 |  | - | 0 | Br | - | - |
| 601 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

| | | | | | | |
|-----|--|-----------------|---|---|--------|---|
| 602 | | - | 0 | SC ₃ H ₇ -i | - | - |
| 603 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 604 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 605 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 606 | | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 607 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |
| 608 | | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 609 | | CH ₂ | 1 | Cl | - | - |
| 610 | | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 611 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 612 | | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 613 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 614 | | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 615 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 616 | | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 617 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 618 | | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 619 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 620 | | - | 0 | Cl | - | - |
| 621 | | - | 0 | OCF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

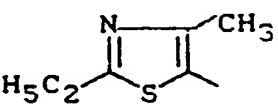
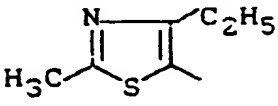
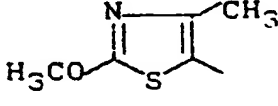
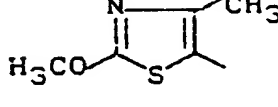
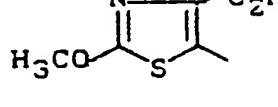
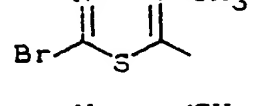
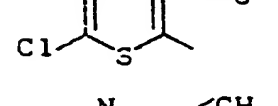
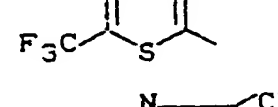
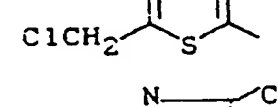
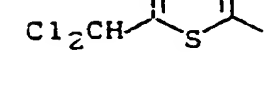
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|--------|---|
| 622 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 623 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 624 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 625 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 626 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 627 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 628 |  | - | 0 | CF ₃ | - | - |
| 629 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 630 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 631 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|-----------------|---|--|-------------------------------------|---------------------------|
| 632 | | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 633 | | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 634 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 635 | | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 636 | | - | 0 | CH ₃ | - | - |
| 637 | | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 638 | | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 639 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 640 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 641 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

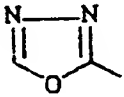
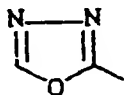
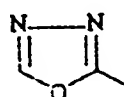
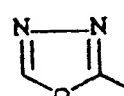

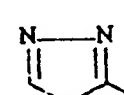
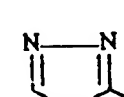
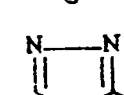
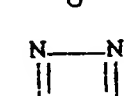
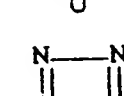
| Bsp.- Nr. | R ⁱ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 642 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 643 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 644 |  | - | 0 | SOC ₃ H _{7-n} | - | - |
| 645 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 646 |  | CH ₂ | 1 | Cl | - | - |
| 647 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 648 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 649 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 650 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 651 |  | - | 0 | CF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

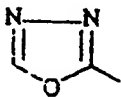
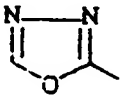
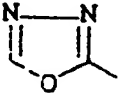
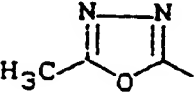
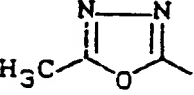
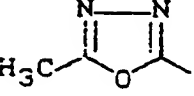
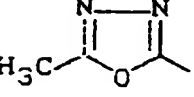
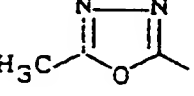
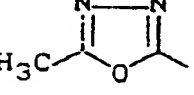
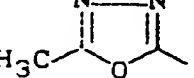
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 652 |  | - | 0 | CH ₃ | - | - |
| 653 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 654 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 655 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 656 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 657 |  | - | 0 | OC ₃ H _{7-i} | - | - |
| 658 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 659 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 660 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 661 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

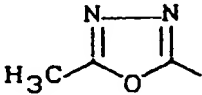
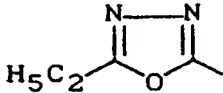
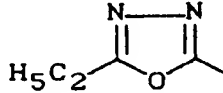
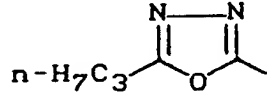
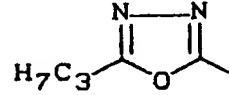
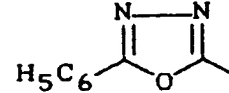
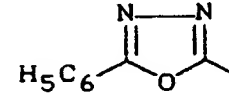
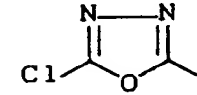
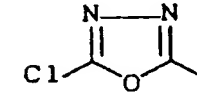
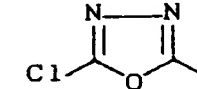
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 662 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | 148 |
| 663 |  | - | 0 | CO ₂ C ₃ H ₇ | - | |
| 664 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 665 |  | - | 0 | SC ₃ H _{7-i} | - | |
| 666 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | |
| 667 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 668 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
| 669 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 670 |  | - | 0 | Br | - | |
| 671 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|-------------------------------------|---------------------------|

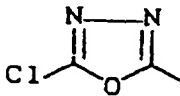
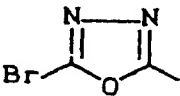
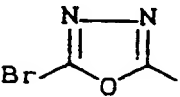
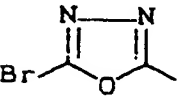
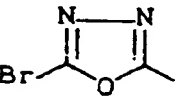
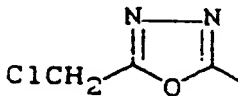
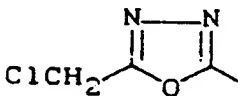
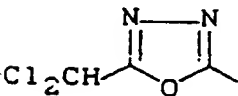
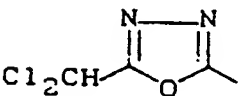
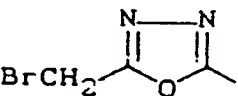
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|--------|--|
| 672 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
| 673 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
| 674 |  | - | 0 | Cl | - | |
| 675 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
| 676 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | |
| 677 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 678 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 679 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 680 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
| 681 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

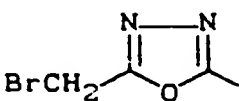
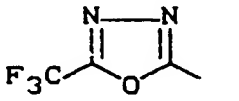
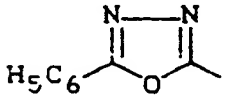
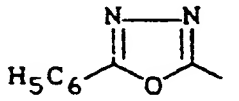
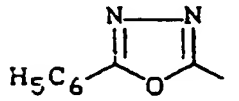
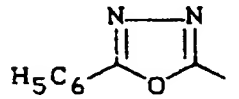
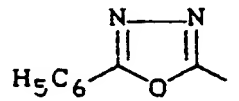
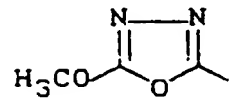
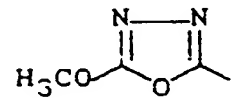
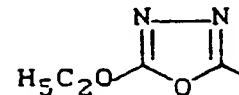
| | | | | | | |
|-----|---|-----------------|---|---|--------|---|
| 682 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 683 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 684 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 685 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 686 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃)OCH ₃ | - | - |
| 687 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 688 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 689 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 690 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 691 |  | - | 0 | Br | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

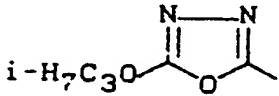
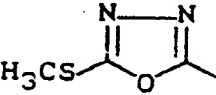
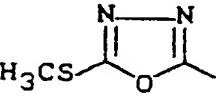
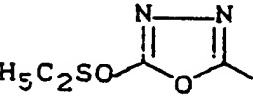
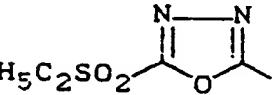
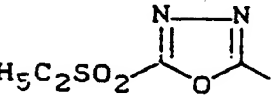
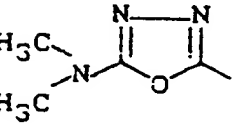
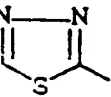
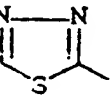
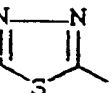
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 692 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 693 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 694 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 695 |  | - | 0 | CF ₃ | - | - |
| 696 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 697 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 698 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H ₇ -i | - | - |
| 699 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 700 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 701 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

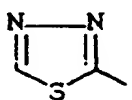
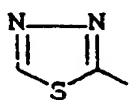
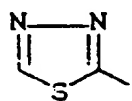
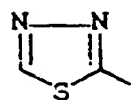
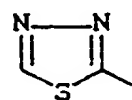
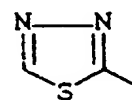
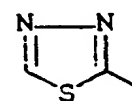
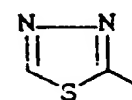
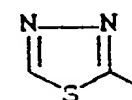
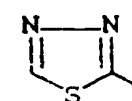
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|--------|---|
| 702 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 703 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 704 |  | - | 0 | SOC ₃ H _{7-n} | - | - |
| 705 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 706 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 707 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 708 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | - |
| 709 |  | - | 0 | CF ₃ | - | - |
| 710 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 711 |  | - | 0 | CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

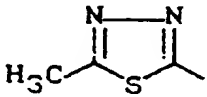
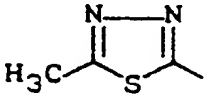
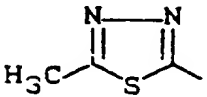
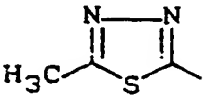
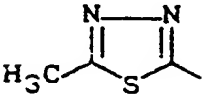
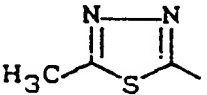
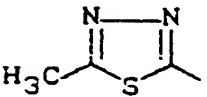
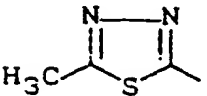
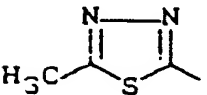
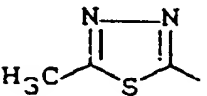
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 712 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
| 713 |  | - | 0 | Cl | - | |
| 714 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
| 715 |  | - | 0 | OCHF ₂ | - | |
| 716 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 717 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
| 718 |  | - | 0 | SOC ₂ H ₅ | - | |
| 719 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 720 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | |
| 721 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

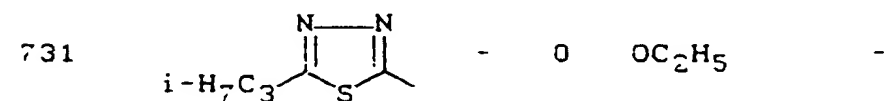
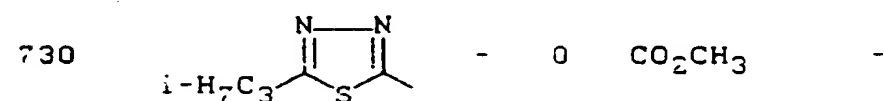
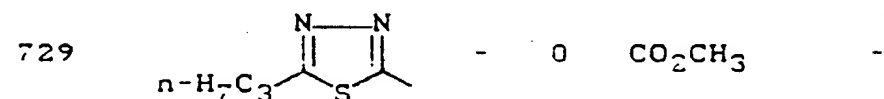
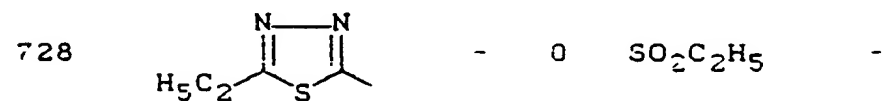
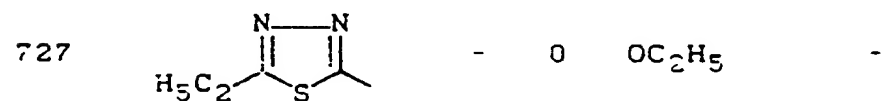
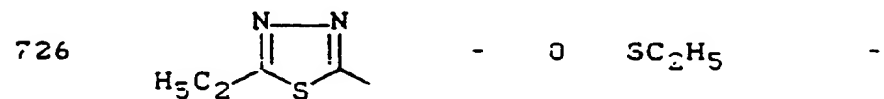
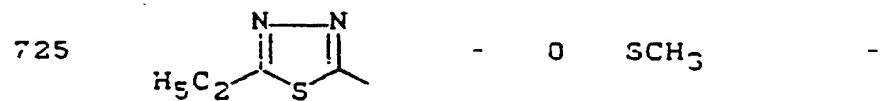
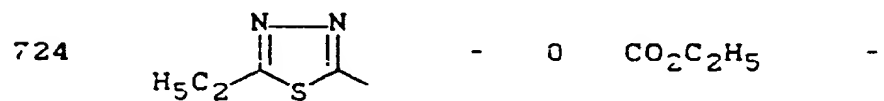
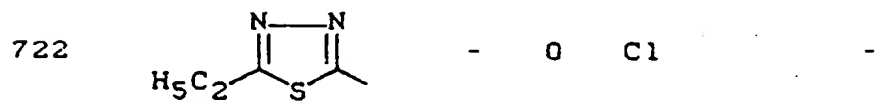


Tabelle 1 - Fortsetzung

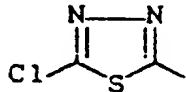
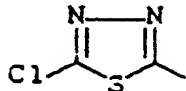
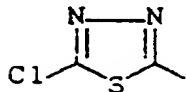
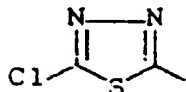
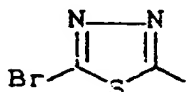
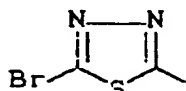
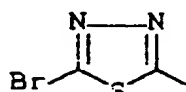
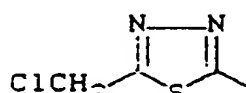
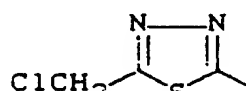
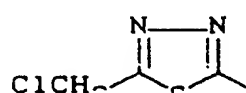
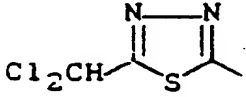
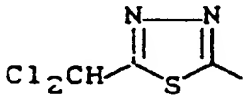
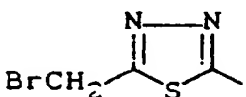
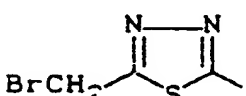
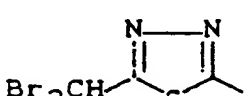
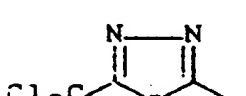
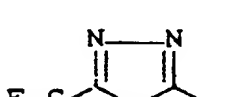
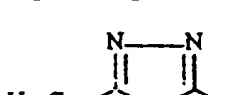
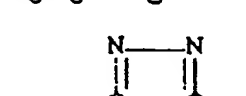
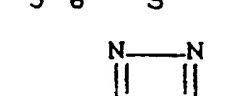
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|-------------------------------------|---------------------------|
| 732 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 733 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 734 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 735 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |
| 736 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 737 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 738 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 739 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 740 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 741 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|---|
| 742 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 743 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 744 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 745 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 746 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 747 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 748 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 749 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 750 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 751 |  | - | 0 | Cl | - | - |



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 90 12 0152

| EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE | | | |
|---|---|--|---|
| Kategorie | Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile | Betrifft Anspruch | KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl.5) |
| A | EP-A-0 283 876 (BAYER) * Seiten 3-4; Ansprüche 1,5-8 * - - - | 1-3,5-8 | C 07 D 249/12 C 07 D 401/14 C 07 D 403/12 |
| P,A | EP-A-0 341 489 (BAYER) * Seite 2; Ansprüche 1-4,7 * - - - - - | 1-3,5-8 | C 07 D 401/12 C 07 D 409/12 C 07 D 417/12 A 01 N 47/38 |
| | | | RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.5) |
| | | | C 07 D 249/00 |
| Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt | | | |
| Recherchenort | | Abschlußdatum der Recherche | |
| Den Haag | | 25 Juli 91 | |
| | | Prüfer | |
| | | ENGLISH R.F. | |
| KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE | | | |
| X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet | | E : älteres Patentedokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist | |
| Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie | | D : in der Anmeldung angeführtes Dokument | |
| A : technologischer Hintergrund | | L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument | |
| O : nichtschriftliche Offenbarung | | | |
| P : Zwischenliteratur | | & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument | |
| T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze | | | |



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



Veröffentlichungsnummer: **0 425 948 A3**

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: **90120152.5**

(22) Anmeldetag: **20.10.90**

(51) Int. Cl.⁵: **C07D 249/12, C07D 401/14,
C07D 403/12, C07D 401/12,
C07D 409/12, C07D 417/12,
A01N 47/38**

(30) Priorität: **03.11.89 DE 3936622**

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
08.05.91 Patentblatt 91/19

(84) Benannte Vertragsstaaten:
BE CH DE DK ES FR GB IT LI NL

(88) Veröffentlichungstag des später veröffentlichten
Recherchenberichts: **09.10.91 Patentblatt 91/41**

(71) Anmelder: **BAYER AG**

W-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk(DE)

(72) Erfinder: **Müller, Klaus-Helmut, Dr.
Bockhackstrasse 55**

W-4000 Düsseldorf 13(DE)

Erfinder: **Babczinski, Peter, Dr.**

In der Lohrenbeck 11

W-5600 Wuppertal 1(DE)

Erfinder: **Santel, Hans-Joachim, Dr.**

Grünstrasse 9a

W-5090 Leverkusen 1(DE)

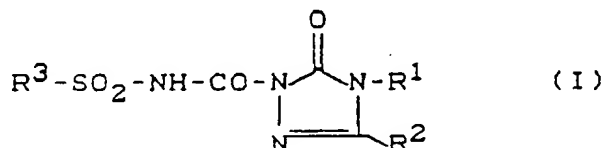
Erfinder: **Schmidt, Robert R., Dr.**

Im Waldwinkel 110

W-5060 Bergisch Gladbach 2(DE)

(54) **Halogenierte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone.**

(57) Die Erfindung betrifft neue halogenierte 2-Sulfonylaminocarbonyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-one der allgemeinen Formel (I)

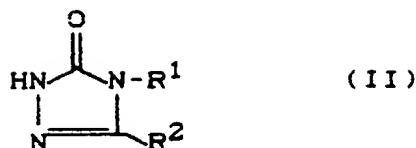


in welcher

R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino oder für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino steht, R² für Halogen steht, und

R³ für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Aralkyl, Aryl, Heteroaryl steht, sowie Salze von Verbindungen der Formel (I), Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung als Herbizide.

EP 0 425 948 A3



5

in welcher

R^1 und R^2 die oben angegebenen Bedeutungen haben,

10 mit Sulfonsäureamid-Derivaten der allgemeinen Formel (VI),

$\text{R}^3\text{-SO}_2\text{-NH-CO-Z}$ (VI)

in welcher

R^3 die oben angegebene Bedeutung hat und

Z für Halogen, Alkoxy, Aralkoxy oder Aryloxy steht,

15 gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt und gegebenenfalls aus den nach Verfahren (a), (b) oder (c) hergestellten Verbindungen der Formel (I) nach üblichen Methoden Salze erzeugt.

5. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem halogenierten Sulfonylamino-carbonyltriazolinon der Formel (I) gemäß Anspruch 1 oder 4.

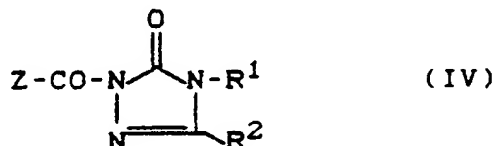
20 6. Verwendung von halogenierten Sulfonylamino-carbonyltriazolinonen der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1 oder 4 zur Bekämpfung von unerwünschtem Pflanzenwachstum.

7. Verfahren zur Bekämpfung von Unkräutern, dadurch gekennzeichnet, daß man halogenierte Sulfonylamino-carbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1 oder 4 auf die Unkräuter oder ihren Lebensraum einwirken läßt.

25 8. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man halogenierte Sulfonylamino-carbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1 oder 4 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.

9. Halogenierte Triazolinone der allgemeinen Formel (IV),

30



35

in welcher

R^1 für Wasserstoff, Hydroxy, Amino oder für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino

40

steht,

R^2 für Halogen steht und

Z für Halogen, Alkoxy, Aralkoxy oder Aryloxy steht.

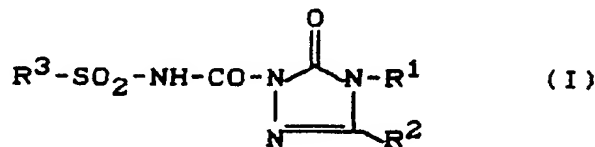
45

50

55

sowie Salze von Verbindungen der Formel (I).

4. Verfahren zur Herstellung von halogenierten Sulfonylaminotriazolinonen der allgemeinen Formel (I)



in welcher

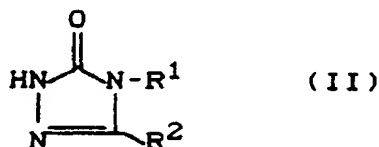
R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino oder für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Akenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino steht,

R² für Halogen steht, und

R³ für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Aralkyl, Aryl, Heteroaryl steht, sowie Salze von Verbindungen der Formel (I),

dadurch gekennzeichnet, daß man

a) halogenierte Triazolinone der allgemeinen Formel (II)



in welcher

R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Sulfonylisocyanaten der allgemeinen Formel (III),

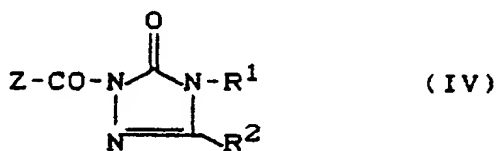
R³-SO₂-N=CO (III)

in welcher

R³ die oben angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder daß man

b) halogenierte Triazolinon-Derivate der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Z für Halogen, Alkoxy, Aralkoxy oder Aryloxy steht,

mit Sulfonsäureamiden der allgemeinen Formel (V),

R³-SO₂-NH₂ (V)

in welcher

R³ die oben angegebene Bedeutung hat,

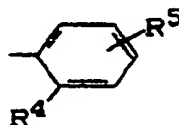
gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder daß man

c) halogenierte Triazolinone der allgemeinen Formel (II),

R¹ für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Fluor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes C₁-C₄-Alkyl, für Allyl, für C₃-C₆-Cycloalkyl, für Phenyl, für C₁-C₄-Alkoxy, C₃-C₄-Alkenyloxy, für C₁-C₃-Alkylamino, C₃-C₆-Cycloalkylamino oder für Di-(C₁-C₃-alkyl)-amino steht,

R² für Chlor oder Brom steht, und

5 R³ für die Gruppierung



10

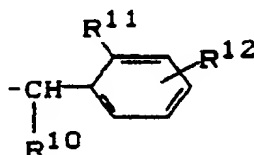
steht, worin

R⁴ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Trifluormethyl, Methoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, 2-Chlor-ethoxy, 2-Methoxyethoxy, C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₃-Alkylsulfonyl, Dimethylaminosulfonyl, Diethylaminosulfonyl, N-Methoxy-N-methylaminosulfonyl, N-Methoxyaminosulfonyl, Phenyl, Phenoxy oder C₁-C₃-Alkoxy-carbonyl steht und

R⁵ für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Brom steht;

weiterhin

20 R³ für den Rest



25

steht, worin

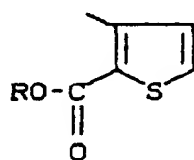
30 R¹⁰ für Wasserstoff steht,

R¹¹ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht und

R¹² für Wasserstoff steht;

weiterhin

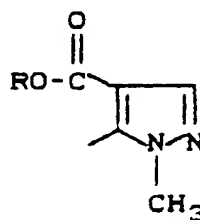
35 R³ für den Rest



40

steht,

45 worin R für C₁-C₄-Alkyl steht, oder für den Rest



50

55

steht,

worin R für C₁-C₄-Alkyl steht,

(welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino-sulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder Dimethylaminocarbonyl stehen, und

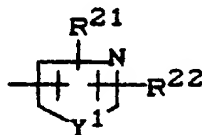
A für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung N-Z¹ steht, wobei

5 Z¹ für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder Cyano substituiert ist), C₃-C₆-Cycloalkyl Benzyl, Phenyl, (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder Nitro substituiert ist), C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminocarbonyl steht;

weiterhin

R³ für den Rest

10



15

steht, worin

R²¹ und R²² gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, Halogen, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Halogenalkoxy stehen,

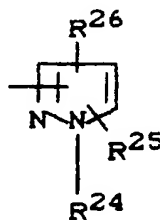
20 Y¹ für Schwefel oder die Gruppierung N-R²³ steht, wobei

R²³ für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl steht;

weiterhin

R³ für den Rest

25



30

steht, worin

35 R²⁴ für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, Benzyl, Pyridyl, Chinolinyll oder Phenyl steht,

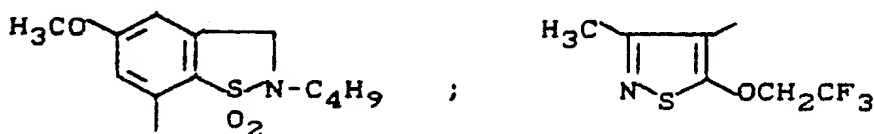
R²⁵ für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), Dioxolanyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl steht und

R²⁶ für Wasserstoff, Halogen oder C₁-C₄-Alkyl steht;

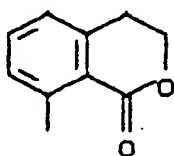
40 weiterhin

R³ für eine der nachstehend aufgeführten Gruppierungen steht.

45



50



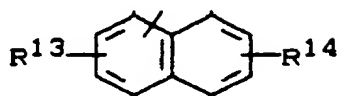
55

sowie Salze von Verbindungen der Formel (I).

3. Halogenierte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

C₄-Alkylsulfonyl oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl stehen;
weiterhin
R³ für den Rest

5



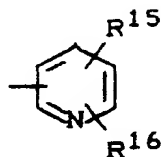
10

steht,
worin

R¹³ und R¹⁴ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist) oder C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), stehen;
weiterhin
R³ für den Rest

15

20



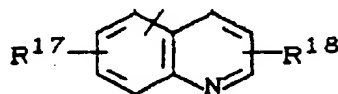
25

steht, worin

R¹⁵ und R¹⁶ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), für C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl (welche gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert sind), für Aminosulfonyl, Mono-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl, Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder Dimethylaminocarbonyl stehen;
weiterhin
R³ für den Rest

30

35



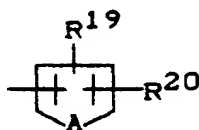
40

steht, worin

R¹⁷ und R¹⁸ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Brom substituiert ist), C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), für C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl (welche gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert sind), oder für Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl stehen;
weiterhin
R³ für den Rest

45

50



55 steht, worin

R¹⁹ und R²⁰ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl

steht, worin

R^4 und R^5 gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Nitro, C_1 - C_6 -Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Carboxy, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl, C_1 - C_4 -Alkylamino-carbonyl, Di-(C_1 - C_4 -alkyl)amino-carbonyl, Hydroxy, C_1 - C_4 -Alkoxy, Formyloxy, C_1 - C_4 -Alkyl-carbonyloxy, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyloxy, C_1 - C_4 -Alkylaminocarbonyloxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylsulfinyl, C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl, Di-(C_1 - C_4 -alkyl)aminosulfonyl, C_3 - C_6 -Cycloalkyl oder Phenyl substituiert ist), für C_2 - C_6 -Alkenyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl, Carboxy oder Phenyl substituiert ist), für C_2 - C_6 -Alkinyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl, Carboxy oder Phenyl substituiert ist), für C_1 - C_4 -Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Carboxy, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylsulfinyl oder C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl substituiert ist), für C_1 - C_4 -Alkylthio (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Carboxy, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylsulfinyl oder C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl substituiert ist), für C_3 - C_6 -Alkenyloxy (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano oder C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl substituiert ist), für C_2 - C_6 -Alkenylthio (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C_1 - C_3 -Alkylthio oder C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl substituiert ist), C_3 - C_6 -Alkinyloxy, C_3 - C_6 -Alkinylthio oder für den Rest $-S(O)_p-R^6$ stehen, wobei

p für die Zahlen 1 oder 2 steht und

R^6 für C_1 - C_4 -Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano oder C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl substituiert ist), C_3 - C_6 -Alkenyl, C_3 - C_6 -Alkinyl, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkylamino, C_1 - C_4 -Alkylamino, Di-(C_1 - C_4 -alkyl)-amino, Phenyl oder für den Rest $-NHOR^7$ steht, wobei

R^7 für C_1 - C_{12} -Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylsulfinyl, C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl, C_1 - C_4 -Alkyl-carbonyl, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl, C_1 - C_4 -Alkylamino-carbonyl oder Di-(C_1 - C_4 -alkyl)-amino-carbonyl substituiert ist), für C_3 - C_6 -Alkenyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiert ist), C_3 - C_6 -Alkinyl, C_3 - C_6 -Cycloalkyl, C_3 - C_6 -Cycloalkyl- C_1 - C_2 -alkyl, Phenyl- C_1 - C_2 -alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Nitro, Cyano, C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy oder C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl substituiert ist), für Benzhydryl oder für Phenyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Nitro, Cyano, C_1 - C_4 -Alkyl, Trifluormethyl, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_2 -Fluoralkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, Trifluormethylthio oder C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl substituiert ist) steht,

R^4 und/oder R^5 weiterhin für Phenyl oder Phenoxy, für C_1 - C_4 -Alkylcarbonylamino, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonylamino, C_1 - C_4 -Alkylamino-carbonyl-amino, Di-(C_1 - C_4 -alkyl)-amino-carbonylamino, oder für den Rest $-CO-R^8$ stehen, wobei

R^8 für C_1 - C_6 -Alkyl, C_1 - C_6 -Alkoxy, C_3 - C_6 -Cycloalkoxy, C_3 - C_6 -Alkenyloxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylamino, C_1 - C_4 -Alkoxyamino, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl-amino oder Di-(C_1 - C_4 -alkyl)-amino steht (welche gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert sind),

R^4 und/oder R^5 weiterhin für Trimethylsilyl, Thiazoliny, C_1 - C_4 -Alkylsulfonyloxy, Di-(C_1 - C_4 -alkyl)-aminosulfonylamino oder für den Rest $-CH=N-R^9$ stehen, wobei

R^9 für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylsulfinyl oder C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl substituiertes C_1 - C_6 -Alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Benzyl, für gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C_3 - C_6 -Alkenyl oder C_3 - C_6 -Alkinyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy, Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Trifluormethylthio substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes C_1 - C_6 -Alkoxy, C_3 - C_6 -Alkenoxy, C_3 - C_6 -Alkinoxy oder Benzoyloxy für Amino, C_1 - C_4 -Alkylamino, Di-(C_1 - C_4 -alkyl)-amino, Phenylamino, C_1 - C_4 -Alkyl-carbonyl-amino, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonylamino, C_1 - C_4 -Alkyl-sulfonylamino oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituiertes Phenylsulfonylamino steht,

weiterhin

R^3 für den Rest



steht, worin

R^{10} für Wasserstoff oder C_1 - C_4 -Alkyl steht,

R^{11} und R^{12} gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, C_1 - C_4 -Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C_1 - C_4 -Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), Carboxy, C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl, Dimethylaminocarbonyl, C_1 -

Post-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 2000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

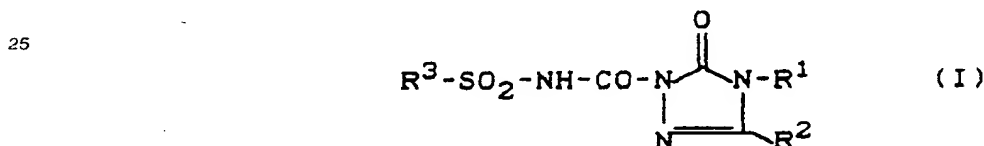
0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

- 15 100 % = totale Vernichtung

Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik zeigen in diesem Test z.B. die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 3, 6 und 7.

20 Ansprüche

1. Halogenierte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I),



- 30 in welcher

R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino oder für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino steht,

- 35 R² für Halogen steht, und

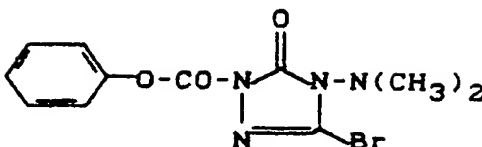
R³ für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Aralkyl, Aryl, Heteroaryl steht, sowie Salze von Verbindungen der Formel (I).

2. Halogenierte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher
- 40 R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylcarbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkynyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₄-Alkenyloxy, für gegebenenfalls durch Fluor, Cyano, Phenyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₄-Alkylamino, C₃-C₆-Cycloalkylamino oder für
- 45 Di-(C₁-C₄-alkyl)amino steht,

- 50 R² für Fluor, Chlor, Brom oder Jod steht und

R³ für die Gruppierung



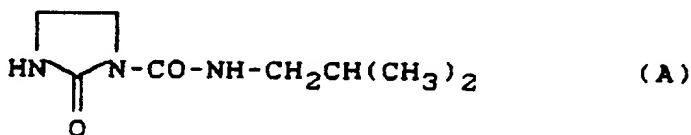
Beispiel (IV-1)

7,0 g (33,8 mMol) 5-Brom-4-dimethylamino-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 100 ml Wasser und 100 ml Methylenchlorid aufgenommen und mit 0,2 g Tetrabutylammoniumbromid und 1,5 g (37,5 mMol) Natriumhydroxid versetzt. Unter starkem Rühren werden dann bei 20 °C 5,9 g (37,7 mMol) Chlorameisensäurephenylester zugetropft und das Reaktionsgemisch wird noch 12 Stunden bei 20 °C gerührt. Die organische Phase wird abgetrennt, mit Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird eingeeengt, der Rückstand mit Diethylether verrührt und das hierbei kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 8,7 g (79 % der Theorie) 5-Brom-4-dimethylamino-2-phenoxycarbonyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 136 °C.

Anwendungsbeispiele:

Bei den folgenden Anwendungsbeispielen wird das bekannte Herbizid Isocarbamid nachstehender Formel (A) als Vergleichssubstanz herangezogen:



(bekannt aus BE 737 449; DE 1 795 117).

Beispiel A

Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton
Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

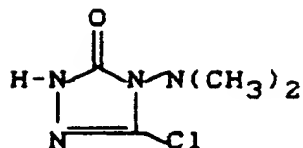
Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät und nach 24 Stunden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffs pro Flächeneinheit. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle. Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik zeigen in diesem Test z.B. die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 3, 6 und 7.

Beispiel B



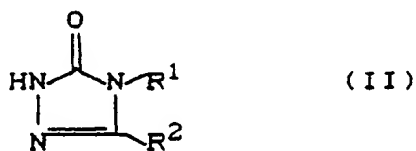
5

Eine Mischung aus 6,0 g (0,029 Mol) 5-Brom-4-dimethylamino-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und 200 ml konzentrierter Salzsäure wird 3 Stunden unter Rückfluß erhitzt. Dann wird eingeeengt, der Rückstand in wenig Wasser aufgenommen, mit Natriumhydrogencarbonat neutralisiert und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert. Das Filtrat wird mit Essigsäureethylester extrahiert, das vorher isolierte kristalline Produkt zur organischen Phase gegeben, letztere mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird eingeeengt, der Rückstand mit Diethylether verrieben und das hierbei kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 3,1 g (66 % der Theorie) 5-Chlor-4-dimethylamino-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 158°C.

Analog zu den Beispielen (II-1) und (II-2) können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 4 aufgeführten Verbindungen der Formel (II) hergestellt werden.





20



25

Tabelle 4: Herstellungsbeispiele für die Verbindungen der Formel (II)

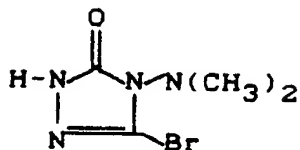
30

| Bsp.- Nr. | R ¹ | R ² | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|----------------|------------------------|
| II-3 |  | Br | 137 |
| II-4 | C ₃ H ₇ | Br | 98 |
| II-5 |  | Cl | 121 |
| II-6 | C ₃ H ₇ | Cl | 91 |
| II-7 | C ₂ H ₅ | Br | 142 |
| II-8 | C ₂ H ₅ | Cl | 112 |
| II-9 | CH ₂ -  | Br | |
| II-10 | CH ₂ -  | Cl | |

50

55

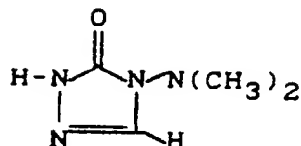
Ausgangsstoffe der Formel (IV):



5

Stufe 1:

10

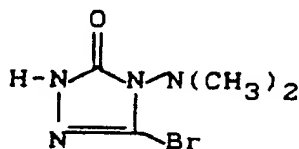


15

20 856 g (4,0 Mol) Diphenylcarbonat werden in 588 g Ethylenchlorid gelöst. Unter Wasserkühlung werden 245 g (4,0 Mol) Dimethylhydrazin (98%ig) zugetropft, dann wird langsam erwärmt und nach 4 Stunden bei 60° C nachgerührt.

Nach Abkühlen auf 20° C werden 200 g (4,0 Mol) Hydrazinhydrat zugetropft und 12 Stunden nachgerührt. Es wird auf 70-80° C erwärmt und nach ca. 1 Stunde weiter gerührt. Die erkaltete Lösung wird im Vakuum destilliert, wobei Ethylenchlorid und Wasser entfernt werden (Sumpftemperatur zuletzt 100° C). Zu 25 424 g (4,0 Mol) Orthoameisensäure-trimethylester wird im Verlauf von 90 Minuten bei Rückflußtemperatur (ca. 102° C) obige phenolische Dimethylcarbodihydrazid-Lösung getropft. Nach destillativem Entfernen des gebildeten Methanols wird im Vakuum Phenol abdestilliert, anschließend werden bei einer Kopftemperatur von 85-105° C 282 g Produktgemisch erhalten. Dieses Gemisch wird mit 600 ml Aceton verkocht und nach Filtration in der Siedehitze wird das Filtrat abgekühlt. Das dabei kristallin angefallene Produkt wird durch 30 Absaugen isoliert.

Man erhält 71 g (14% der Theorie) 4-Dimethylamino-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 127° C.

35 Stufe 2:

40

45 Eine Mischung aus 15,0 g (0,117 Mol) 4-Dimethylamino-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on, 4,7 g (0,117 Mol) Natriumhydroxid und 150 ml Wasser wird unter Eiskühlung und unter Rühren im Verlauf von 2 Stunden mit 18,8 g (0,117 Mol) Brom versetzt. Das kristallin angefallene Produkt wird anschließend durch Absaugen isoliert.

50 Man erhält 19,6 g (81 % der Theorie) 5-Brom-4-dimethylamino-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 163° C.

Beispiel (II-2)

55

Tabelle 3 (Fortsetzung)

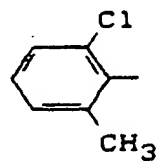
| Bsp. Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|-------------|----------------|----------------|----------------|----------------------|
|-------------|----------------|----------------|----------------|----------------------|

5

17

C₂H₅

Cl



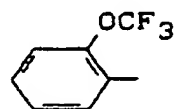
156

10

18



Cl



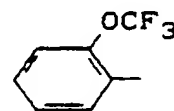
142

15

19



Br



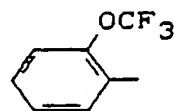
134

20

20

CH₃

Cl



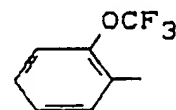
144

25

21

CH₃

Br



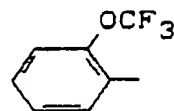
169

30

22

C₂H₅

Cl



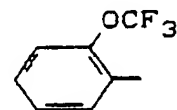
122

35

23

C₂H₅

Br



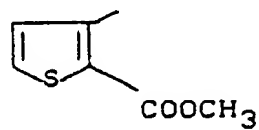
133

40

24



Cl



174

45

Ausgangsstoffe der Formel (II):

50

Beispiel (II-1)

55

Tabelle 3 (Forts tzung)

Всп.

Nr.

 \mathbb{R}^1 R^2 \mathbb{R}^3 Schmelzpunkt
(°C)

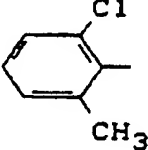
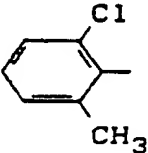

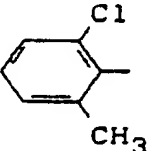

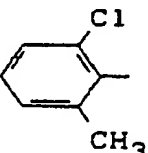
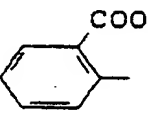
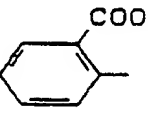
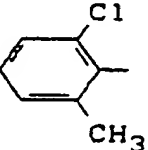
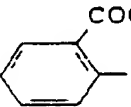
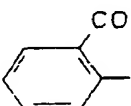
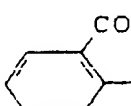

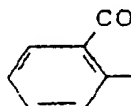

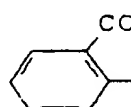
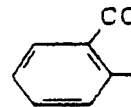
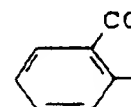
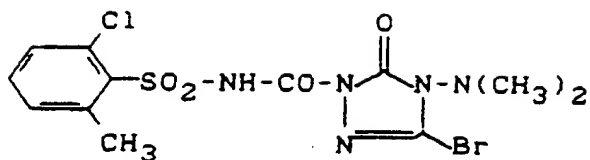
| | | | | |
|----|---|----|---|-----|
| 10 | CH_3 | Cl |  | 141 |
| 11 | CH_3 | Br |  | 159 |
| 12 |  | Br |  | 168 |
| 13 |  | Cl |  | 162 |
| 14 | C_2H_5 | Br |  | 147 |
| 15 | C_2H_5 | Cl |  | 161 |
| 16 | C_2H_5 | Br |  | 161 |

Tabelle 3:

Herstellungsbeispiele für die Verbindungen d r Formel
(I)

| Bsp. Nr. | R ¹ | R ² | R ³ | Schmelzpunkt (°C) |
|-------------|---|----------------|---|----------------------|
| 3 | CH ₃ | Cl |  | 170 |
| 4 | CH ₃ | Br |  | 173 |
| 5 | N(CH ₃) ₂ | Br |  | 139 |
| 6 |  | Br |  | 155 |
| 7 |  | Cl |  | 148 |
| 8 | C ₃ H ₇ | Br |  | 120 |
| 9 | C ₃ H ₇ | Cl |  | 119 |

Beispiel 2

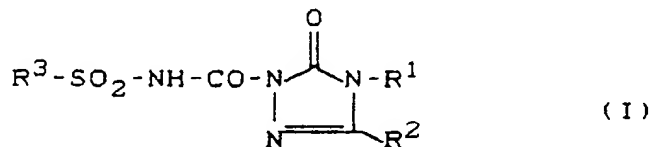


(Verfahren (b))

1,9 g (12,5 mMol) 1,8-Diazabicyclo-[5,4,0]-undec-7-en (DBU) und 2,6 g (12,6 mMol) 2-Chlor-6-methylbenzolsulfonamid werden zu einer Lösung von 4,0 g (12,2 mMol) 5-Brom-4-dimethylamino-2-phenoxycarbonyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on in 60 ml Acetonitril gegeben. Das Reaktionsgemisch wird 3 Stunden bei 20 °C gerührt, dann auf etwa das doppelte Volumen Eiswasser gegossen und durch Zugabe von 2N-Salzsäure der pH-Wert auf ca. 2 eingestellt. Anschließend wird mit Methylenchlorid extrahiert, die organische Phase mit Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird eingeeengt, der Rückstand mit Diethylether verrührt und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 1,0 g (19 % der Theorie) 5-Brom-4-dimethylamino-2-(2-chlor-6-methyl-phenylsulfonyl-amino-carbonyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 163 °C.

Analog zu den Beispielen 1 und 2 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 3 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt werden.



methylthio-1,2,4-triazin-5(4H)-on (METRIBUZIN) zur Unkrautbekämpfung in Sojabohnen, in Frage; ferner auch 2,4-Dichlorphenoxyessigsäure (2,4-D); 4-(2,4-Dichlorphenoxy)buttersäure (2,4-DB); 2,4-Dichlorphenoxypropionsäure (2,4-DP); 3-Isopropyl-2,1,3-benzothiadiazin-4-on-2,2-dioxid (BENTAZON); Methyl-5-(2,4-dichlorphenoxy)-2-nitrobenzoat (BIFENOX); 3,5-Dibrom-4-hydroxy-benzonitril (BROMOXYNIL); 2-Chlor-N-[[[(4-methoxy-6-methyl-1,3,5-triazin-2-yl)-amino]-carbonyl]-benzolsulfonamid (CHLORSULFURON); N,N-Dimethyl-N'-(3-chlor-4-methylphenyl)harnstoff (CHLORTOLURON); 4-Amino-6-t-butyl-3-ethylthio-1,2,4-triazin-5(4H)-on (ETHIOZIN); [(4-Amino-3,5-dichlor-6-fluor-2-pyridinyl)-oxy]-essigsäure bzw. deren 1-Methylheptylester (FLUROXYPYR); Methyl-2-[4,5-dihydro-4-methyl-4-(1-methylethyl)-5-oxo-1H-imidazol-2-yl]-4(5)-methylbenzoat (IMAZAMETHABENZ); 3,5-Diiod-4-hydroxybenzonitril (IOXYNIL); N,N-Dimethyl-N'-(4-isopropylphenyl)-harnstoff (ISOPROTURON); (2-Methyl-4-chlorphenoxy)-essigsäure (MCPA); (4-Chlor-2-methylphenoxy)propionsäure (MCPPE); N-Methyl-2-(1,3-benzthiazol-2-yloxy)-acetanilid (MEFENACET); 2-[[[(4-Methoxy-6-methyl-1,3,5-triazin-2-yl)-amino]-carbonyl]-amino]-sulfonyl]-benzoesäure oder deren Methylester (METSULFURON); N-(1-Ethylpropyl)-3,4-dimethyl-2,6-dinitroanilin (PENDIMETHALIN); 0-(6-Chlor-3-phenylpyridazin-4-yl)-S-octyl-thiocarbonat (PYRIDATE); 4-Ethylamino-2-t-butylamino-6-methylthio-s-triazin (TERBUTRYNE); 3-[[[(4-Methoxy-6-methyl-1,3,5-triazin-2-yl)-amino]-carbonyl]-amino]-sulfonyl]-thiophen-2-carbonsäure-methylester (THIAMETURON); N,N-Diisopropyl-S-(2,3,3-trichlorallyl)thiolcarbamat (TRIALATE). Einige Mischungen zeigen überraschenderweise auch synergistische Wirkung.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden.

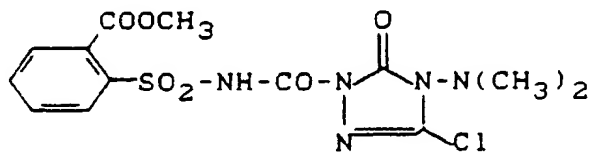
Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 0,01 und 15 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 0,05 und 10 kg pro ha.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele

Beispiel 1



(Verfahren (a))

2,8 g (17,2 mMol) 5-Chlor-4-dimethylamino-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 60 ml Acetonitril gelöst und unter Rühren werden 6,6 g (27,4 mMol) 2-Methoxycarbonyl-phenylsulfonylisocyanat, gelöst in 20 ml Acetonitril, zu dieser Lösung gegeben. Das Reaktionsgemisch wird 6 Stunden bei 20 °C gerührt und dann eingeeengt. Der verbleibende Rückstand wird mit Diethylether verrührt, und das kristallin angefallene Produkt wird durch Absaugen isoliert.

Man erhält 6,9 g (99 % der Theorie) 5-Chlor-4-dimethylamino-2-(2-methoxycarbonyl-phenylsulfonyl)-aminocarbonyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 146 °C.

curus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich insbesondere zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen Kulturen sowohl im Voraufbau - als auch im Nachaufbau-Verfahren. Sie sind deutlich wirksamer als z.B. Isocarbamid.

In gewissem Umfang zeigen die erfindungsgemäßen Verbindungen auch fungizide Wirkung, z.B. gegen echten Mehltau an Reben und gegen Pyricularia oryzae an Reis.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum-erzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzol, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage:

z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Distomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum-erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylaryl-polyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaleine und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide wie z.B. 1-Amino-6-ethylthio-3-(2,2-dimethylpropyl)-1,3,5-triazin-2,4(1H,3H)-dion (AMETHYDIONE) oder N-(2-Benzthiazolyl)-N,N'-dimethyl-harnstoff (METABENZTHIAZURON) zur Unkrautbekämpfung in Getreide; 4-Amino-3-methyl-6-phenyl-1,2,4-triazin-5-(4H)-on (METAMITRON) zur Unkrautbekämpfung in Zuckerrüben und 4-Amino-6-(1,1-dimethylethyl)-3-

Alkalicarbonate und -alkoholate wie Natrium- und Kaliumcarbonat, Natrium- und Kalium-tert-butylat, ferner aliphatische, aromatische oder heterocyclische Amine, beispielsweise Triethylamin, Trimethylamin, Dimethylanilin, Dimethylbenzylamin, Pyridin, 1,5-Diazabicyclo-[4,3,0]-non-5-en (DBN), 1,8-Diazabicyclo-[5,4,0]-undec-7-en (DBU) und 1,4-Diazabicyclo-[2,2,2]-octan (DABCO).

- 5 Die Reaktionstemperaturen können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0 °C und 100 °C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 10 °C und 60 °C.

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

- 10 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) werden die jeweils benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der beiden jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Reaktionen werden im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Säureakzeptors durchgeführt, und das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der jeweils erforderlichen Temperatur gerührt. Die
- 15 Aufarbeitung erfolgt bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (b) jeweils nach üblichen Methoden.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (c) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden halogenierten Triazolinone der Formel (II) sind bereits als Ausgangsstoffe für das erfindungsgemäße Verfahren (a) beschrieben worden.

- Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (c) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) weiter als
- 20 Ausgangsstoffe zu verwendenden Sulfonsäureamid-Derivate sind durch die Formel (VI) allgemein definiert.

In Formel (VI) haben R³ und Z vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) bzw. (IV) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R³ und Z angegeben wurden.

- Das erfindungsgemäße Verfahren (c) wird vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln
- 25 durchgeführt. Es kommen hierbei die gleichen organischen Lösungsmittel in Betracht, die oben im Zusammenhang mit der Beschreibung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) genannt wurden.

Verfahren (c) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors durchgeführt. Es kommen hierbei die gleichen Säurebindemittel in Betracht, die oben im Zusammenhang mit der Beschreibung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) genannt wurden.

- 30 Die Reaktionstemperaturen können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (c) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0 °C und 100 °C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 10 °C und 60 °C.

Das erfindungsgemäße Verfahren (c) wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

- 35 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) werden die jeweils benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der beiden jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Reaktionen werden im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Säureakzeptors durchgeführt, und das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der jeweils erforderlichen Temperatur gerührt. Die
- 40 Aufarbeitung erfolgt bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (c) jeweils nach üblichen Methoden.

Zur Überführung in Salze werden die Verbindungen der Formel (I) mit geeigneten Salzbildnern, wie z.B. Natrium- oder Kalium-hydroxid, -methylat oder -ethylat, Ammoniak, Isopropylamin, Dibutylamin oder Triethylamin, in geeigneten Verdünnungsmitteln, wie z.B. Wasser, Methanol oder Ethanol, verrührt. Die Salze können - dann gegebenenfalls nach Einengen - als kristalline Produkte isoliert werden.

- 45 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defolianten, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

- 50 Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

- Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum,
- 55 Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus.

Die Reaktionskomponenten können in beliebiger Reihenfolge zusammengegeben werden. Das Reaktionsgemisch wird bis zum Ende der Umsetzung gerührt, eingeeengt und das im Rückstand verbleibende Rohprodukt mit einem geeigneten Lösungsmittel, wie z. B. Diethylether, zur Kristallisation gebracht. Das kristallin angefallene Produkt der Formel (I) wird durch Absaugen isoliert.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Triazolinon-Derivate sind durch die Formel (IV) allgemein definiert.

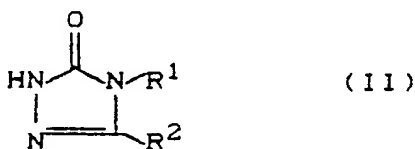
In Formel (IV) haben R^1 und R^2 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R^1 und R^2 angegeben wurden und

Z steht vorzugsweise für Chlor, C_1 - C_4 -Alkoxy, Benzyloxy oder Phenoxy, insbesondere für Methoxy oder Phenoxy.

Mögliche Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind die aus den in Tabelle 2 aufgeführten Verbindungen der Formel (II) und Phosgen, Chlorameisensäure-methylester, Chlorameisensäure-benzylester, Chlorameisensäurephenylester oder Diphenylcarbonat herzustellenden Verbindungen der Formel (IV).

Die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind noch nicht bekannt.

Man erhält die neuen halogenierten Triazolinon-Derivate der Formel (IV), wenn man Triazolinone der allgemeinen Formel (II)



in welcher R^1 und R^2 die oben angegebenen Bedeutungen haben, mit Kohlensäurederivaten der allgemeinen Formel (XI) $Z-CO-Z^1$ (XI)

in welcher Z die oben angegebene Bedeutung hat und Z^1 für eine Abgangsgruppe wie Chlor, Methoxy, Benzyloxy oder Phenoxy steht, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Tetrahydrofuran, und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors, wie z.B. Natriumhydrid oder Kalium-tert-butylat, bei Temperaturen zwischen -20°C und $+100^\circ\text{C}$ umgesetzt (vgl. auch die Herstellungsbeispiele).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Sulfonsäureamide sind durch die Formel (V) allgemein definiert.

In Formel (V) hat R^3 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R^3 angegeben wurde.

Als Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (V) seien genannt:

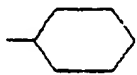



2-Fluor-, 2-Chlor-, 2-Brom-, 2-Methyl-, 2-Methoxy-, 2-Trifluormethyl-, 2-Difluor-methoxy-, 2-Trifluormethoxy-, 2-Methylthio-, 2-Ethylthio-, 2-Propylthio-, 2-Methylsulfinyl-, 2-Methylsulfonyl-, 2-Dimethylaminosulfonyl-, 2-Diethylaminosulfonyl-, 2-(N-Methoxy-N-methyl)-aminosulfonyl-, 2-Phenyl-, 2-Phenoxy-, 2-Methoxycarbonyl-, 2-Ethoxycarbonyl-, 2-Propoxycarbonyl- und 2-Isopropoxycarbonyl-benzolsulfonsäureamid, 2-Fluor-, 2-Chlor-, 2-Difluormethoxy-, 2-Trifluormethoxy-, 2-Methoxycarbonyl- und 2-Ethoxycarbonyl-phenylmethansulfonsäureamid, 2-Methoxycarbonyl-3-thiophensulfonsäureamid, 4-Methoxycarbonyl- und 4-Ethoxycarbonyl-1-methylpyrazol-5-sulfonsäureamid.

Die Sulfonsäureamide der Formel (V) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. US-P 4 127 405, 4 169 719, 4 371 391; EP-A 7 687, 13 480, 21 641, 23 141, 23 422, 30 139, 35 893, 44 808, 44 809, 48 143, 51 466, 64 322, 70 041, 173 312).

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) zur Herstellung der neuen Verbindungen der Formel (I) wird vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Als Verdünnungsmittel kommen dabei praktisch alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht, wie sie beispielsweise oben für das erfindungsgemäße Verfahren (a) angegeben sind.

Als Säureakzeptoren können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (b) alle üblicherweise für derartige Umsetzungen verwendbaren Säurebindemittel eingesetzt werden. Vorzugsweise in Frage kommen Alkalimetallhydroxide wie z. B. Natrium- und Kaliumhydroxid, Erdalkalihydroxide wie z. B. Calciumhydroxid,

Tabelle 2: (Fortsetzung)

| | R ¹ | R ² |
|----|---|----------------|
| 5 |  | Br |
| 10 |  | Cl |
| 15 |  | Br |
| |  | Cl |
| 20 | OC ₃ H ₇ | Cl |

Die Ausgangsstoffe der Formel (II) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. Chem. Ber. 102 (1969), 755-766 und die Herstellungsbeispiele).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Sulfonylisocyanate sind durch die Formel (III) allgemein definiert.

In Formel (III) hat R³ vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R³ angegeben wurde.

Als Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (III) seien genannt:

2-Fluor-, 2-Chlor-, 2-Brom-, 2-Methyl-, 2-Methoxy-, 2-Trifluormethyl-, 2-Difluor-methoxy-, 2-Trifluormethoxy-, 2-Methylthio-, 2-Ethylthio-, 2-Propylthio-, 2-Methylsulfinyl-, 2-Methylsulfonyl-, 2-Dimethylaminosulfonyl-, 2-Diethylaminosulfonyl-, 2-(N-Methoxy-N-methyl)-aminosulfonyl-, 2-Phenyl-, 2-Phenoxy-, 2-Methoxycarbonyl-, 2-Ethoxycarbonyl-, 2-Propoxycarbonyl- und 2-Isopropoxycarbonyl-phenylsulfonylisocyanat, 2-Fluor-, 2-Chlor-, 2-Difluormethoxy-, 2-Trifluormethoxy-, 2-Methoxycarbonyl- und 2-Ethoxycarbonyl-benzylsulfonylisocyanat, 2-Methoxycarbonyl-3-thienyl-sulfonylisocyanat, 4-Methoxycarbonyl- und 4-Ethoxycarbonyl-1-methyl-pyrazol-5-yl-sulfonylisocyanat.

Die Sulfonylisocyanate der Formel (III) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. US-P 4 127 405, 4 169 719, 4 371 391; EP-A 7 687, 13 480, 21 641, 23 141, 23 422, 30 139, 35 893, 44 808, 44 809, 48 143, 51 466, 64 322, 70 041, 173 312).

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) zur Herstellung der neuen Verbindungen der Formel (I) wird vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Als Verdünnungsmittel kommen dabei praktisch alle inerten organischen Lösungsmittel in Frage. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische und aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Pentan, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Petrolether, Benzin, Ligroin, Benzol, Toluol, Xylol, Methylenchlorid, Ethylenchlorid, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Chlorbenzol und o-Dichlorbenzol, Ether wie Diethyl- und Dibutylether, Glykoldimethylether und Diglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan, Ketone wie Aceton, Methyl-ethyl-, Methyl-isopropyl- und Methyl-isobutyl-keton, Ester wie Essigsäuremethylester und -ethylester, Nitrile wie z.B. Acetonitril und Propionitril, Amide wie z. B. Dimethylformamid, Dimethylacetamid und N-Methyl-pyrrolidon sowie Dimethylsulfoxid, Tetramethylensulfon und Hexamethylphosphorsäuretriamid.

Die Reaktionstemperaturen können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren (a) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0 °C und 150 °C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 10 °C und 80 °C.

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird im allgemeinen bei Normaldruck durchgeführt.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) setzt man je Mol Triazolinon der Formel (II) im allgemeinen zwischen 1 und 3 Mol, vorzugsweise zwischen 1 und 2 Mol, Sulfonylisocyanat der Formel (III) ein.

Tabelle 2: (Fortsetzung)






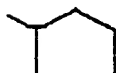
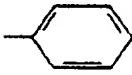





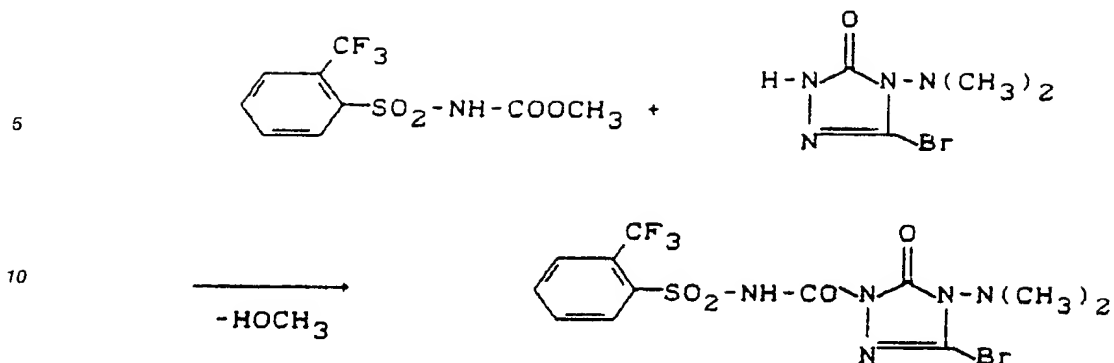
| | R ¹ | R ² |
|----|---|--|
| 5 | | |
| 10 |  | Br |
| 15 | $\begin{array}{c} \text{C}_2\text{H}_5 \\ \text{C}_4\text{H}_9 \end{array}$ | $\begin{array}{c} \text{I} \\ \text{Br} \end{array}$ |
| 20 | $\begin{array}{c} \text{CH}-\text{C}_2\text{H}_5 \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$ | Br |
| 25 | $\begin{array}{c} \text{CH}-\text{C}_2\text{H}_5 \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$ | Cl |
| 30 | $\begin{array}{c} \text{CH}(\text{CH}_3)_2 \\ \text{CH}_2-\text{CHBr}-\text{CH}_2\text{Br} \\ \text{CH}_2-\text{CHBr}-\text{CH}_2\text{Br} \end{array}$ | $\begin{array}{c} \text{Cl} \\ \text{Br} \\ \text{Cl} \end{array}$ |
| 35 |  | Br |
| 40 |  | Cl |
| 45 |  | F |
| 50 |  | Cl |
| 55 |  | Br |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

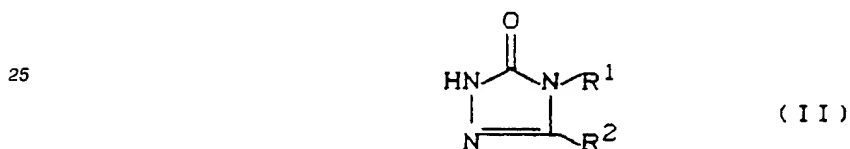
| | R ¹ | R ² |
|----|---|----------------|
| 5 | CH(CH ₃) ₂ | F |
| | CH ₃ | F |
| | C ₃ H ₇ | Cl |
| 10 | C ₂ H ₅ | F |
| |  | Br |
| 15 | N(CH ₃) ₂ | Br |
| | N(CH ₃) ₂ | Cl |
| | NH-CH ₃ | Br |
| | OCH ₃ | Br |
| | OCH ₃ | Cl |
| 20 | C ₂ H ₅ | F |
| | C ₃ H ₇ | F |
| |  | Cl |
| 25 |  | F |
| | OC ₂ H ₅ | Br |
| | OC ₂ H ₅ | Cl |
| 30 | CH ₂  | Br |
| | CH ₂  | Cl |
| 35 | | |
| | C(CH ₃) ₃ | Br |
| | CH ₂ -CH(CH ₃) ₂ | Br |
| 40 | CH ₂ -CH(CH ₃) ₂ | Cl |
| | CH ₂  | Br |
| 45 | O-C ₃ H ₇ -n | Br |
| 50 | | |
| 55 | | |



15 Die bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (c) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden halogenierten Triazolinone sind durch die Formel (II) allgemein definiert.


In Formel (II) haben R¹ und R² vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R¹ und R² angegeben wurden.

Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (II) sind in der nachstehenden Tabelle 2 aufgeführt.



30 Tabelle 2: Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (II)

35

| R ¹ | R ² |
|---|----------------|
| H | Br |
| CH ₃ | Br |
| C ₂ H ₅ | Br |
| C ₃ H ₇ | Br |
| CH(CH ₃) ₂ | Cl |
| C ₄ H ₉ | Cl |
| CH ₃ | Cl |
| C ₂ H ₅ | Cl |
|  | Br |
| CH ₂ -CH=CH ₂ | Br |

40

45

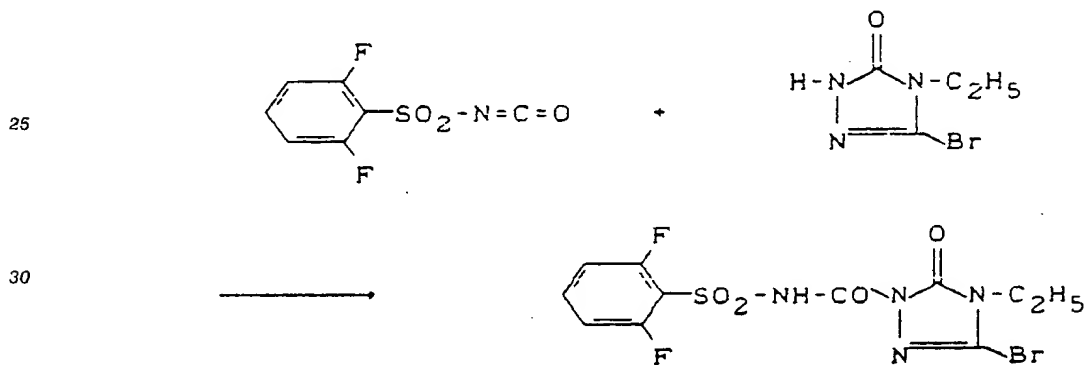
50

55

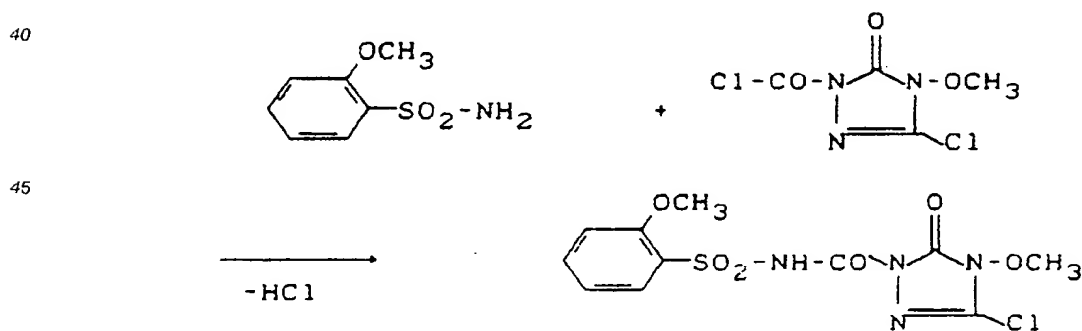
Tabelle 1: (Fortsetzung)

| 5 | R^1 | R^2 | R^3 |
|----|--------|-------|-------|
| 10 | CH_3 | Cl | |
| 15 | CH_3 | Br | |

Verwendet man beispielsweise 2,6-Difluor-phenylsulfonylisocyanat und 5-Brom-4-ethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) durch folgendes Formelschema skizziert werden:



Verwendet man beispielsweise 2-Methoxy-benzolsulfonsäureamid und 5-Chlor-2-chlorcarbonyl-4-methoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) durch folgendes Formelschema skizziert werden:



Verwendet man beispielsweise 5-Brom-4-dimethylamino-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und N-Methoxycarbonyl-2-trifluormethyl-benzolsulfonsäureamid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (c) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

Tabelle 1: (Fortsetzung)

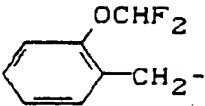
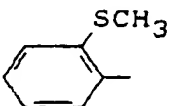
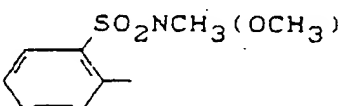
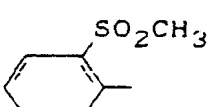
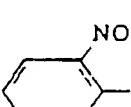
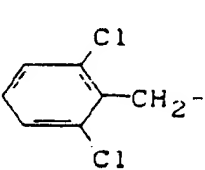
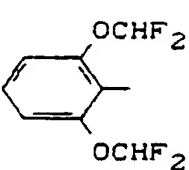
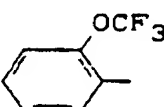
| | R ¹ | R ² | R ³ |
|----|---|----------------|---|
| 5 | | | |
| 10 | CH ₂ -CHBr-CH ₂ -Br | Br |  |
| 15 | CH ₃ | Cl |  |
| 20 | CH ₃ | Br |  |
| 25 | CH ₃ | Cl |  |
| 30 | CH ₃ | F |  |
| 35 | C ₂ H ₅ | Cl |  |
| 40 | C ₂ H ₅ | Br |  |
| 45 | C ₃ H ₇ -n | Br |  |
| 50 | | | |
| 55 | | | |

Tabelle 1: (Fortsetzung)

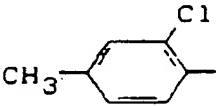
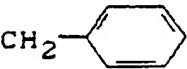
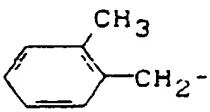
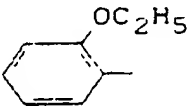
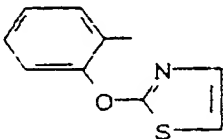

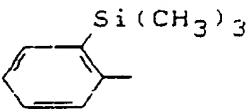

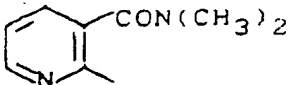

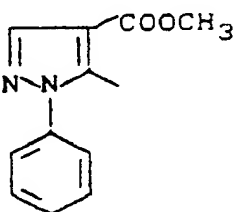
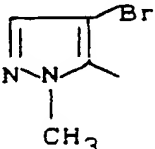
| | R ¹ | R ² | R ³ |
|----|---|----------------|---|
| 5 | | | |
| 10 | CH ₃ | F |  |
| 15 |  | Cl |  |
| 20 | CH ₃ | Cl |  |
| 25 | CH ₃ | Br |  |
| 30 |  | Cl |  |
| 35 |  | Br |  |
| 40 |  | Cl |  |
| 45 | CH ₂ -CH=CH ₂ | Br |  |
| 50 | | | |
| 55 | | | |

Tabelle 1: (Fortsetzung)

| | R ¹ | R ² | R ³ |
|----|---------------------|----------------|--|
| 5 | | | |
| 10 | <chem>CC1CC1</chem> | Br | <chem>COc1ccccc1</chem> |
| 15 | <chem>C1CC1</chem> | Cl | <chem>c1ccc(cc1)S(=O)(=O)c2ccccc2</chem> |
| 20 | <chem>CC</chem> | Br | <chem>c1ccccc1-c2ccccc2</chem> |
| 25 | <chem>CC</chem> | Cl | <chem>c1ccc(cc1)Oc2ccccc2</chem> |
| 30 | | | |
| 35 | <chem>CN(C)C</chem> | Cl | <chem>Fc1ccccc1</chem> |
| 40 | <chem>CC</chem> | Cl | <chem>Cc1ccccc1Cl</chem> |
| 45 | <chem>CC</chem> | Br | <chem>Cc1ccccc1Br</chem> |
| 50 | | | |
| 55 | | | |

Tabelle 1: (Fortsetzung)

| R ¹ | R ² | R ³ |
|----------------------------------|----------------|----------------|
| N(CH ₃) ₂ | Cl | |
| N(CH ₃) ₂ | F | |
| CH ₃ | Cl | |
| CH ₃ | Cl | |
| C ₂ H ₅ | Cl | |
| | Br | |
| | Cl | |
| | F | |
| | Cl | |

Tabelle 1: (Fortsetzung)

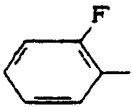
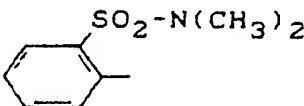
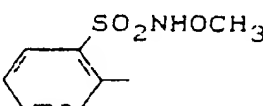
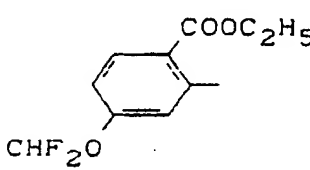
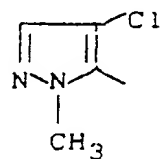

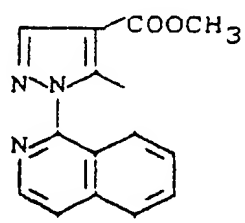
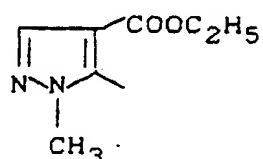
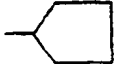
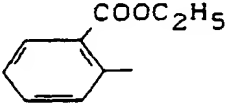

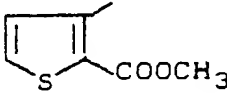

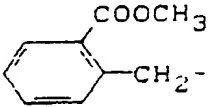
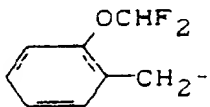
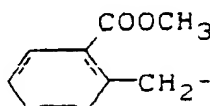
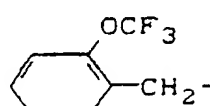
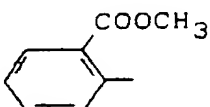
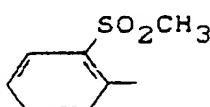
| | R ¹ | R ² | R ³ |
|----|---|----------------|--|
| 5 | | | |
| 10 | CH ₃ | Cl |  |
| 15 | CH ₃ | Br |  |
| 20 | CH ₃ | Cl |  |
| 25 | C ₂ H ₅ | Cl |  |
| 30 | C ₃ H ₇ | Cl |  |
| 35 |  | Cl |  |
| 40 | | | |
| 45 | CH ₃ | Cl |  |
| 50 | | | |
| 55 | | | |

Tabelle 1: (Fortsetzung)

| R ¹ | R ² | R ³ |
|---|----------------|--|
|  | Cl |  |
|  | Br |  |
|  | Cl |  |
| CH ₃ | Br |  |
| CH ₃ | Br |  |
| C ₂ H ₅ | Cl |  |
| OCH ₃ | Cl |  |
| O-CH ₂ -CH=CH ₂ | Cl |  |

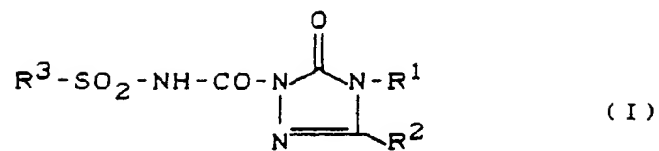

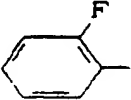

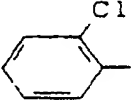
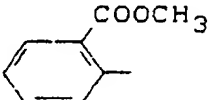
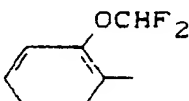
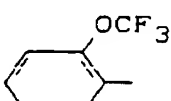
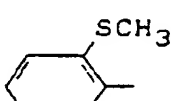
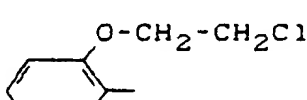
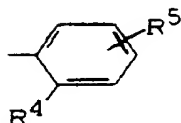


Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

| R ¹ | R ² | R ³ |
|---|----------------|--|
|  | Br |  |
|  | Cl |  |
| CH ₃ | F |  |
| CH ₃ | Cl |  |
| CH ₃ | Br |  |
| C ₂ H ₅ | F |  |
| CH ₂ -CH=CH ₂ | Cl |  |



5

steht, worin

R⁴ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Trifluormethyl, Methoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, 2-Chlor-ethoxy, 2-Methoxy-ethoxy, C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₃-Alkylsulfinyl, C₁-C₃-Alkylsulfonyl, Dimethylaminosulfonyl, Diethylaminosulfonyl, N-Methoxy-N-methylaminosulfonyl, N-Methoxyaminosulfonyl, Phenyl, Phenoxy oder C₁-C₃-Alkoxy-carbonyl steht und

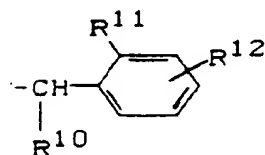
10

R⁵ für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Brom steht;

weiterhin

R³ für den Rest

15



20

steht, worin

R¹⁰ für Wasserstoff steht,

25

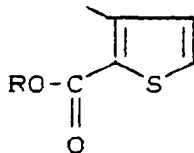
R¹¹ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Methoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht und

R¹² für Wasserstoff steht;

weiterhin

R³ für den Rest

30



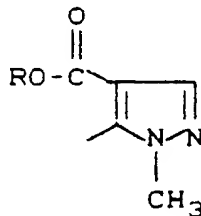
35

steht,

worin R für C₁-C₄-Alkyl steht, oder

40

für den Rest



45

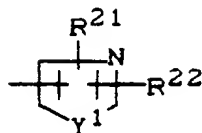
steht,

worin R für C₁-C₄-Alkyl steht.

50

Beispiele für die erfindungsgemäßen Verbindungen sind in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführt - vgl. auch die Herstellungsbeispiele.

55



steht, worin

R²¹ und R²² gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, Halogen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl,

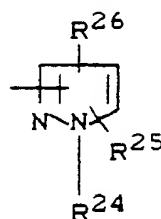
C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Halogenalkoxy stehen,

Y¹ für Schwefel oder die Gruppierung N-R²³ steht, wobei

R²³ für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl steht;

weiterhin

R³ für den Rest



steht, worin

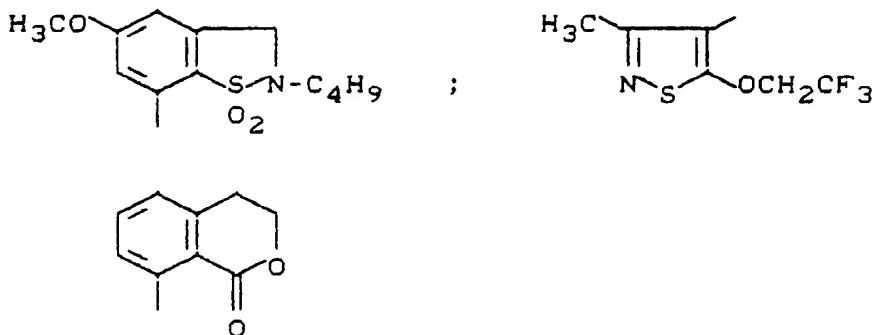
R²⁴ für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, Benzyl, Pyridyl, Chinolinyll oder Phenyl steht,

R²⁵ für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), Dioxolanyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl steht und

R²⁶ für Wasserstoff, Halogen oder C₁-C₄-Alkyl steht;

weiterhin

R³ für eine der nachstehend aufgeführten Gruppierungen steht:



Gegenstand der Erfindung sind weiter vorzugsweise Natrium-, Kalium-, Magnesium-, Calcium-, Ammonium-, C₁-C₄-Alkyl-ammonium-, Di-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, Tri-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, C₅- oder C₆-Cycloalkyl-ammonium- und Di-(C₁-C₂-alkyl)-benzyl-ammonium-Salze von Verbindungen der Formel (I), in welcher R¹, R² und R³ die oben vorzugsweise angegebenen Bedeutungen haben.

Gegenstand der Erfindung sind insbesondere Verbindungen der Formel (I), in welcher

R¹ für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Fluor, Cyano, Methoxy oder Ethoxy substituiertes C₁-C₄-Alkyl, für Allyl, für C₃-C₆-Cycloalkyl, für Phenyl, für C₁-C₄-Alkoxy, C₃-C₄-Alkenyloxy, für C₁-C₃-Alkylamino, C₃-C₆-Cycloalkylamino oder für Di-(C₁-C₃-alkyl)-amino steht,

R² für Chlor oder Brom steht, und

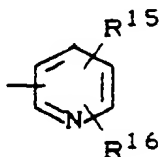
R³ für die Gruppierung

steht, worin

R¹³ und R¹⁴ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist) oder C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), stehen;

5 weiterhin

R³ für den Rest



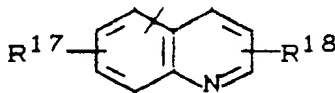
15 steht, worin

R¹⁵ und R¹⁶ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), für C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl (welche gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert sind), für Aminosulfonyl, Mono-

20 (C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl, Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder Dimethylaminocarbonyl stehen;

weiterhin

R³ für den Rest



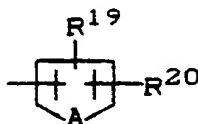
30 steht, worin

R¹⁷ und R¹⁸ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Brom substituiert ist), C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), für C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl (welche gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert sind), oder für Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl

35 stehen;

weiterhin

R³ für den Rest



steht, worin

45 R¹⁹ und R²⁰ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder Dimethylaminocarbonyl stehen, und

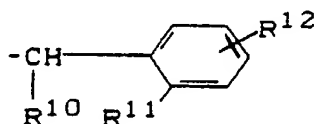
50 A für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung N-Z¹ steht, wobei

Z¹ für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder Cyano substituiert ist), C₃-C₆-Cycloalkyl, Benzyl, Phenyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder Nitro substituiert ist), C₁-C₄-Alkylcarbonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminocarbonyl steht;

weiterhin

55 R³ für den Rest

- Alkoxy-carbonyl, Carboxy oder Phenyl substituiert ist), für C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl substituiert ist), für C₁-C₄-Alkylthio (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl substituiert ist), für C₃-C₆-Alkenyloxy (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiert ist), für C₂-C₆-Alkenylthio (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₃-Alkylthio oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiert ist), C₃-C₆-Alkinyloxy, C₃-C₆-Alkinylthio oder für den Rest -S(O)_p-R⁶ stehen, wobei p für die Zahlen 1 oder 2 steht und
- R⁶ für C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiert ist), C₃-C₆-Alkenyl, C₃-C₆-Alkynyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkylamino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)amino, Phenyl oder für den Rest -NHOR⁷ steht, wobei
- R⁷ für C₁-C₁₂-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₁-C₄-Alkylamino-carbonyl oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino-carbonyl substituiert ist), für C₃-C₆-Alkenyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiert ist), C₃-C₆-Alkynyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₂-alkyl, Phenyl-C₁-C₂-alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Nitro, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiert ist), für Benzhydryl oder für Phenyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Nitro, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₂-Fluoralkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Trifluormethylthio oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiert ist) steht,
- R⁴ und/oder R⁵ weiterhin für Phenyl oder Phenoxy, für C₁-C₄-Alkylcarbonylamino, C₁-C₄-Alkoxy-carbonylamino, C₁-C₄-Alkylamino-carbonyl-amino, Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino-carbonylamino, oder für den Rest -CO-R⁸ stehen, wobei
- R⁸ für C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₃-C₆-Cycloalkoxy, C₃-C₆-Alkenyloxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylamino, C₁-C₄-Alkoxyamino, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl-amino oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino steht (welche gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert sind),
- R⁴ und/oder R⁵ weiterhin für Trimethylsilyl, Thiazoliny, C₁-C₄-Alkylsulfonyloxy, Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonylamino oder für den Rest -CH=N-R⁹ stehen, wobei
- R⁹ für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Benzyl, für gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkynyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Trifluormethylthio substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, C₃-C₆-Alkenoxy, C₃-C₆-Alkinoxy oder Benzyloxy für Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, Phenylamino, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl-amino, C₁-C₄-Alkoxy-carbonylamino, C₁-C₄-Alkyl-sulfonylamino oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituiertes Phenylsulfonylamino steht, weiterhin
- R³ für den Rest



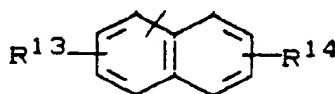
45

steht, worin

R¹⁰ für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl steht,

- R¹¹ und R¹² gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, C₁-C₄-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), C₁-C₄-Alkoxy (welches gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiert ist), Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, Dimethylaminocarbonyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl stehen;
- weiterhin
- R³ für den Rest

55

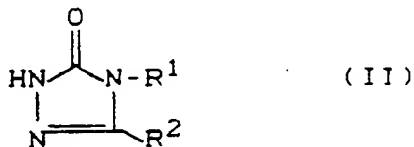


in welcher

R³ die oben angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder wenn man

5 c) halogenierte Triazolinone der allgemeinen Formel (II)



in welcher

15 R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben,
mit Sulfonsäureamid-Derivaten der allgemeinen Formel (VI)

R³-SO₂-NH-CO-Z (VI)

in welcher

R³ die oben angegebene Bedeutung hat und

20 Z für Halogen, Alkoxy, Aralkoxy oder Aryloxy steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt und gegebenenfalls aus den nach Verfahren (a), (b) oder (c) hergestellten Verbindungen der Formel (I) nach üblichen Methoden Salze erzeugt.

Die neuen halogenierten Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I) und ihre Salze
25 zeichnen sich durch starke herbizide Wirksamkeit aus.

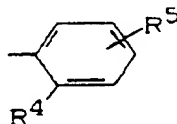
Überraschenderweise zeigen die neuen Verbindungen der Formel (I) erheblich bessere herbizide Wirkung als das strukturell ähnliche bekannte Herbizid 1-Isobutylaminocarbonyl-2-imidazolidinon (Isocarbamid).

Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise Verbindungen der Formel (I), in welcher

30 R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylcarbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkynyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituier-
35 tes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₄-Alkenyloxy, für gegebenenfalls durch Fluor, Cyano, Phenyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₄-Alkylamino, C₃-C₆-Cycloalkylamino oder für
40 Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino steht,

R² für Fluor, Chlor, Brom oder Jod steht und

R³ für die Gruppierung



50 steht, worin

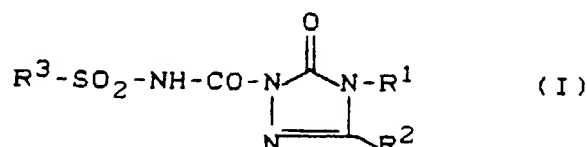
R⁴ und R⁵ gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Nitro, C₁-C₆-Alkyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₁-C₄-Alkylamino-carbonyl, Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino-carbonyl, Hydroxy, C₁-C₄-Alkoxy, Formyloxy, C₁-C₄-Alkyl-carbonyloxy, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyloxy, C₁-C₄-Alkylamino-carbonyloxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyl, C₃-C₆-Cycloalkyl oder Phenyl substituiert ist), für C₂-C₆-Alkenyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, Carboxy oder Phenyl substituiert ist), für C₂-C₆-Alkynyl (welches gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-

HALOGENIERTE SULFONYLAMINOCARBONYLTRIAZOLINONE

Die Erfindung betrifft neue halogenierte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

Es ist bekannt, daß bestimmte substituierte Aminocarbonylimidazolidinone, wie z. B. 1-Isobutylaminocarbonyl-2-imidazolidinon (Isocarbamid), herbizide Eigenschaften aufweisen (vgl. R. Wegler, Chemie der Pflanzenschutz- und Schädlingsbekämpfungsmittel, Band 5, S. 219, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 1977). Die Wirkung dieser Verbindung ist jedoch nicht in allen Belangen zufriedenstellend.

Es wurden nun die neuen halogenierten Sulfonylaminocarbonyl-triazolinone der allgemeinen Formel (I),



in welcher

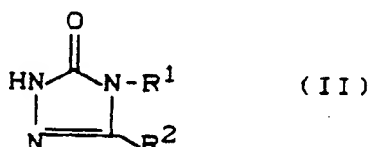
R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino oder für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino steht,

R² für Halogen steht und

R³ für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Aralkyl, Aryl, Heteroaryl steht, sowie Salze von Verbindungen der Formel (I) gefunden.

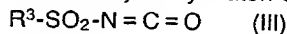
Man erhält die neuen halogenierten Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I), wenn

a) halogenierte Triazolinone der allgemeinen Formel (II)



in welcher

R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben, mit Sulfonylisocyanaten der allgemeinen Formel (III)

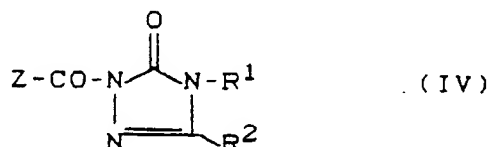


in welcher

R³ die oben angegebene Bedeutung hat,

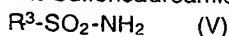
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder wenn man

b) halogenierte Triazolinon-Derivate der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben und Z für Halogen, Alkoxy, Aralkoxy oder Aryloxy steht, mit Sulfonsäureamiden der allgemeinen Formel (V)



(19)



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



(11)

Veröffentlichungsnummer: **0 425 948 A2**

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG(21) Anmeldenummer: **90120152.5**

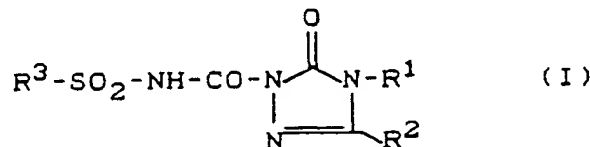
(51) Int. Cl.⁵: **C07D 249/12**, C07D 401/14,
C07D 403/12, C07D 401/12,
C07D 409/12, C07D 417/12,
A01N 47/38

(22) Anmeldetag: **20.10.90**(30) Priorität: **03.11.89 DE 3936622**(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
08.05.91 Patentblatt 91/19(84) Benannte Vertragsstaaten:
BE CH DE DK ES FR GB IT LI NL(71) Anmelder: **BAYER AG****W-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk(DE)**

(72) Erfinder: **Müller, Klaus-Helmut, Dr.**
Bockhackstrasse 55
W-4000 Düsseldorf 13(DE)
Erfinder: **Babczinski, Peter, Dr.**
In der Lohrenbeck 11
W-5600 Wuppertal 1(DE)
Erfinder: **Santel, Hans-Joachim, Dr.**
Grünstrasse 9a
W-5090 Leverkusen 1(DE)
Erfinder: **Schmidt, Robert R., Dr.**
Im Waldwinkel 110
W-5060 Bergisch Gladbach 2(DE)

(54) **Halogenierte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone.**

(57) Die Erfindung betrifft neue halogenierte 2-Sulfonylaminocarbonyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-one der allgemeinen Formel (I)



in welcher

R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino oder für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino steht, R² für Halogen steht, und

R³ für einen gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Aralkyl, Aryl, Heteroaryl steht, sowie Salze von Verbindungen der Formel (I), Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung als Herbizide.

EP 0 425 948 A2

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PC 1 / EP 93/02706

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| EP-A-0341489 | 15-11-89 | DE-A- 3815765 | 23-11-89 |
| | | JP-A- 2011579 | 16-01-90 |
| | | US-A- 5057144 | 15-10-91 |
| | | US-A- 5085684 | 04-02-92 |
| | | US-A- 5094683 | 10-03-92 |
| | | US-A- 5149356 | 22-09-92 |
| | | US-A- 5241074 | 31-08-93 |
| <hr/> | | | |

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 5 C07D249/12 A01N47/38 C07D249/14 C07F9/6518 A01N57/32

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 5 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|--|--------------------|
| A | EP,A,0 341 489 (BAYER AG) 15. November 1989 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument ----- | 1,5,6,10 |

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

- *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. Dezember 1993

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

28. 12. 93

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Allard, M



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 93/02706

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| EP-A-0341489 | 15-11-89 | DE-A- 3815765 | 23-11-89 |
| | | JP-A- 2011579 | 16-01-90 |
| | | US-A- 5057144 | 15-10-91 |
| | | US-A- 5085684 | 04-02-92 |
| | | US-A- 5094683 | 10-03-92 |
| | | US-A- 5149356 | 22-09-92 |
| | | US-A- 5241074 | 31-08-93 |
| ----- | | | |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Application No
PC./EP 93/02706

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 5 C07D249/12 A01N47/38 C07D249/14 C07F9/6518 A01N57/32

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 5 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| A | EP,A,0 341 489 (BAYER AG) 15 November 1989 cited in the application see the whole document ----- | 1,5,6,10 |

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *G* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

13 December 1993

Date of mailing of the international search report

28. 12. 93

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

Allard, M

- 100 -

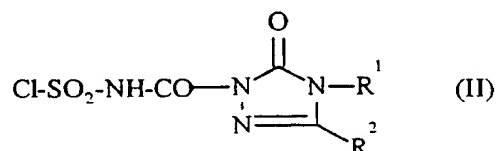
Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino, Alkanoylamino, Alkoxycarbonylamino steht und

- 5 R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Halogen oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Cycloalkyl, Alkenyl, Cycloalkenyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Cycloalkyloxy, Aryloxy, Aralkyloxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkenylthio, Alkinylthio, Cycloalkylthio, Arylthio, Aralkylthio, Alkylamino, Alkenylamino, Arylamino, Aralkylamino, Dialkylamino, Aziridino, Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino steht.

5 mit Chlorsulfonylisocyanat, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt und die hierbei gebildeten Chlorsulfonylamino-carbonyltriazolinone der Formel (II) ohne Zwischenisolierung mit nucleophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III) gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

und gegebenenfalls die nach Verfahren (a) oder (b) erhaltenen Verbindungen der Formel (I) nach üblichen Methoden in Salze überführt.

6. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer
10 Verbindung der Formel (I) gemäß Anspruch 1.
7. Verwendung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung von unerwünschtem Pflanzenwachstum.
8. Verfahren zur Bekämpfung von Unkräutern, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Unkräuter
15 oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
9. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.
10. Chlorsulfonylamino-carbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (II),

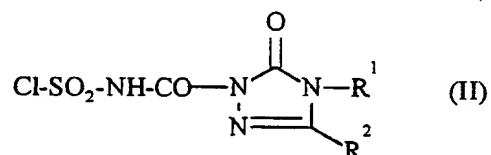


20 in welcher

R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkylidenamino oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl,

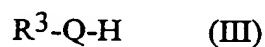
5. Verfahren zur Herstellung von Sulfonylaminocarbonyltriazolinonen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man

- (a) Chlorsulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (II)



in welcher

- 5 R^1 und R^2 die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,
mit nucleophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III)



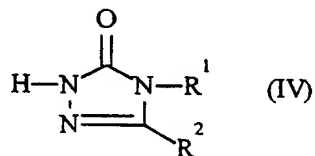
in welcher

Q und R^3 die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,

- 10 gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in
Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder daß man

- (b) Triazolinone der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

- 15 R^1 und R^2 die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,

5 methyl oder Phenylethyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiert sind), durch Acetyl, Cyclopropylcarbonyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl (welche gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Methoxy oder Ethoxy substituiert sind) substituiertes Phenyl, für jeweils
 10 gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Naphthyl oder Tetralinyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Naphthylmethyl, Naphthylethyl, Tetralinylmethyl oder Tetralinylethyl steht,

15 R⁴ für Wasserstoff, Cyano, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Difluormethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylethyl, Allyl, Propargyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methoxy, Ethoxy, Allyloxy oder Benzyloxy steht oder für die Gruppierung Q¹-R⁵ steht, worin

Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und

20 R⁵ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl oder Propyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy oder Ethoxy
 25 substituiertes Phenyl steht.

4. Die Natrium-, Kalium-, Magnesium-, Calcium-, Ammonium-, C₁-C₄-Alkylammonium-, Di-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, Tri-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, C₅- oder C₆-Cycloalkyl-ammonium- und Di-(C₁-C₂-alkyl)-benzyl-ammonium-Salze der Verbindungen der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1, 2 und 3.
 30

- oxyethyl, Methylthiomethyl, Ethylthiomethyl, Methylthioethyl oder Ethylthioethyl, für Cyclopropyl, Difluorcyclopropyl oder Dichlorcyclopropyl, für Phenyl oder Benzyl, für Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für Methoxymethoxy, Ethoxymethoxy, Methoxyethoxy oder Ethoxyethoxy, für Phenoxy oder Benzyl-
5 für Phenoxy oder Benzyl-
oxy, für Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Allylthio, Propargylthio, Cyclopropylmethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Phenylthio oder Benzylthio, für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Phenylamino oder Benzylamino, für Dimethylamino, Diethylamino, Dipropylamino, Methyl-
10 ethylamino, Methylpropylamino, für Aziridino oder für jeweils gegebenenfalls durch Methyl oder Ethyl substituiertes Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino steht,
- R³ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n-
15 oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Cyclopropylethyl, Cyclobutylethyl, Cyclopentylethyl
20 oder Cyclohexylethyl, für gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Propylsulfonyl oder Butylsulfonyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Carboxy, Nitro, durch Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl (welche jeweils
25 gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiert sind), durch Methylsulfonyloxy, Ethylsulfonyloxy, Methylaminosulfonyloxy, Ethylaminosulfonyloxy, Dimethylaminosulfonyloxy, Diethylaminosulfonyloxy, Trifluormethylsulfonyloxy, Dimethylaminocarbonyl oder Diethylaminocarbonyl, durch Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Chlor,
30 Methyl oder Ethyl substituiert sind) durch Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylamino, Phenylcarbonyl, Phenyl-

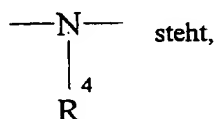
C₆-Alkoxy, C₃-C₆-Alkenyloxy, Benzyloxy, Phenoxy oder Di-(C₁-C₄-alkoxy)-(thio)phosphoryl steht oder für die nachstehende Gruppierung Q¹-R⁵ steht, worin

Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und

- 5 R⁵ für gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder für gegebenenfalls durch Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Phenyl steht.

- 10 3. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß darin

Q für Sauerstoff oder die Gruppierung



- 15 R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für C₃-C₈-Alkylidenamino, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Dichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Trifluorethyl, Trichlorethyl, Chlor-difluorethyl, Tetrafluorethyl, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, für Allyl, Chlorallyl, Dichlorallyl, Propargyl, für Cyclopropyl, Benzyl oder Phenyl, für Methoxy, 20 Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für Allyloxy, n- oder i- oder s-Butoxy, für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, für Cyclopropylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetylamino, Methoxycarbonylamino oder Ethoxycarbonylamino steht,
- 25 R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Fluor, Chlor, Brom, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Cyclopropylmethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Eth-

- R³ für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₆-Alkylaminosulfonyl oder Di-(C₁-C₄-alkyl)aminosulfonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, Nitro, durch C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiert sind), durch C₁-C₄-Alkylsulfonyloxy, C₁-C₄-Alkylaminosulfonyloxy, Di-(C₁-C₄-alkyl)aminosulfonyloxy, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyloxy, Di-(C₁-C₄-alkyl)aminocarbonyl oder C₁-C₄-Alkylaminocarbonyloxy, durch C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sind), durch Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylamino, Phenylcarbonyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-amino substituiert sind), durch C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₃-C₆-Cycloalkylcarbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₁-C₄-Alkoxy substituiert sind) substituiertes Phenyl, Naphthyl, Tetralinyl, Phenyl-C₁-C₄-alkyl, Naphthyl-C₁-C₄-alkyl oder Tetralinyl-C₁-C₄-alkyl steht,
- R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkinyl, für C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, für C₁-

alkylamino oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, für C₁-C₆-Alkanoylamino oder für C₁-C₆-Alkoxy-carbonylamino steht,

- R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Halogen, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom Cyano, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl oder C₂-C₆-Alkenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für Cyclohexenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkyl-sulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₆-Alkenyloxy, C₃-C₆-Alkinyloxy oder C₃-C₆-Cycloalkyloxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenoxy oder Benzyloxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₃-C₆-Alkenylthio, C₃-C₆-Alkinylthio oder C₃-C₆-Cycloalkylthio, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenylthio oder Benzylthio, für C₁-C₆-Alkylamino oder C₃-C₆-Alkenylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenylamino oder Benzylamino, für Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, oder für jeweils gegebenenfalls durch C₁-C₄-Alkyl substituiertes Aziridino, Pyrrolidino oder Morpholino steht,

Alkenyloxy, Aralkoxy, Aryloxy oder Dialkoxo(thio)phosphoryl steht oder für die nachstehende Gruppierung Q^1-R^5 steht, worin

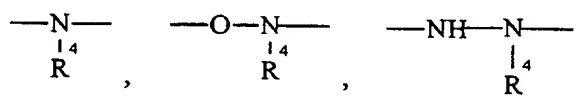
Q^1 für -CO- oder -SO₂- steht und

5 R^5 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl oder Aryl steht,

sowie Salze von Verbindungen der Formel (I).

2. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß darin

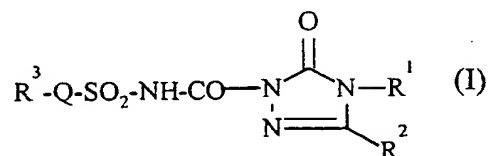
Q für Sauerstoff, Schwefel oder eine der nachstehenden Gruppierungen steht



- 10 R^1 für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für C₂-C₁₀-Alkylidenamino, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylcarbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes
- 15 C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkinyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor-
- 20 und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Phenyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₆-Alkenyloxy, für gegebenenfalls durch Fluor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder
- 25 C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₄-Alkylamino, C₃-C₆-Cyclo-

Patentansprüche

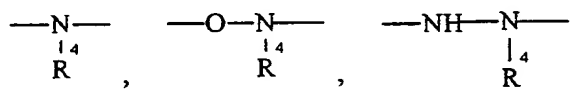
1. Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I),



in welcher

Q für Sauerstoff, Schwefel oder eine der nachstehenden Gruppierungen steht

5



R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkylidenamino oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino, Alkanoylamino, Alkoxycarbonylamino steht,

10 R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Halogen oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Cycloalkyl, Alkenyl, Cycloalkenyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyl, Cycloalkyloxy, Aryloxy, Aralkyloxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkenylthio, Alkinylthio, Cycloalkylthio, Arylthio, Aralkylthio, Alkylamino, Alkenylamino, Arylamino, Aralkylamino, Dialkylamino, Aziridino, Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino steht,

15

R³ für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Alkylsulfonyl, Alkylaminosulfonyl, Dialkylaminosulfonyl, Aryl, Aralkyl steht,

20

R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, Alkoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy,

Tabelle B: Post-emergence-Test/Gewächshaus (Fortsetzung)
Wirkstoff

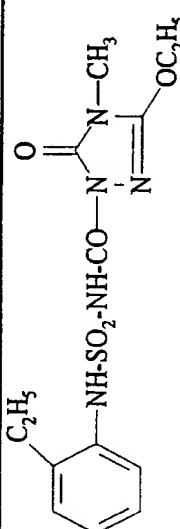
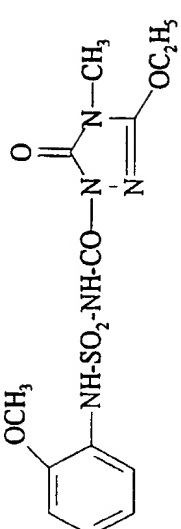
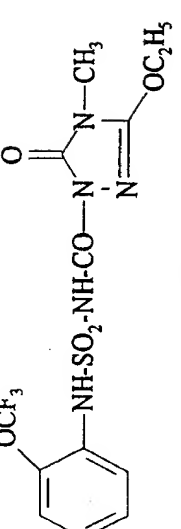
| | Aufwand- menge (g/ha) | Wei- zen | Abu- tilon | Gal- soga | Ipo- moea | Matri- caria | Sola- num | Xan- thium |
|--|-----------------------------|-------------|---------------|--------------|--------------|-----------------|--------------|---------------|
|  (39) | 250 | 0 | 60 | 95 | 60 | 80 | 90 | 100 |
|  (41) | 250 | 0 | 100 | 100 | 80 | 100 | 100 | 100 |
|  (43) | 250 | 0 | 95 | 100 | 80 | 100 | 100 | 100 |

Tabelle B: Post-emergence-Test/Gewächshaus (Fortsetzung)

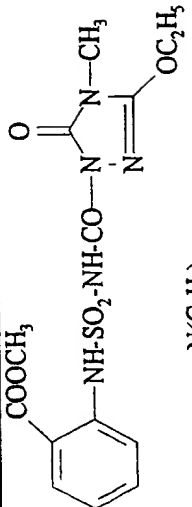
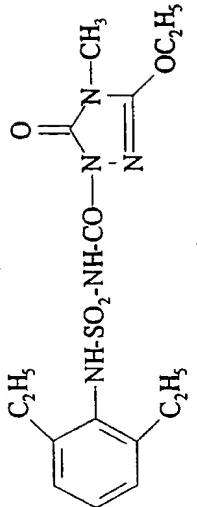
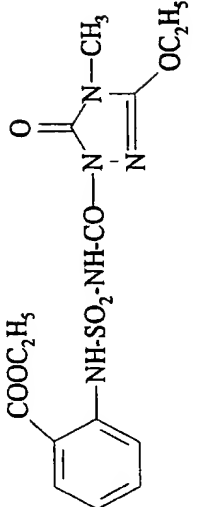
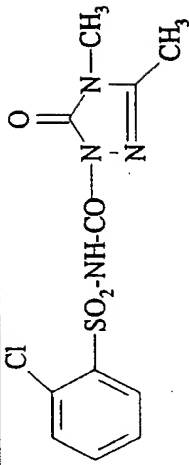
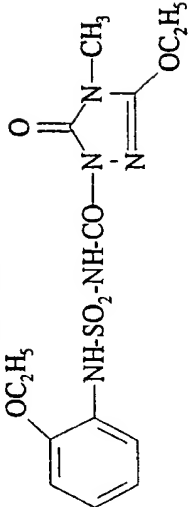
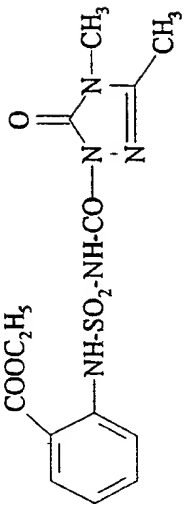
| Wirkstoff | Aufwand- menge (g/ha) | Wei- zen | Abu- tilon | Galim- soga | Ipo- moea | Matri- caria | Sola- num | Xan- thium |
|--|-----------------------------|-------------|---------------|----------------|--------------|-----------------|--------------|---------------|
|  $\times N(C_2H_5)_3$ (4) | 250 | 0 | 70 | 90 | 80 | 30 | 95 | 100 |
|  (33) | 250 | 0 | 90 | 100 | 70 | 90 | 95 | 90 |
|  (2) | 250 | 0 | 80 | 100 | 90 | 90 | 95 | 100 |

Tabelle B: Post-emergence-Test/Gewächshaus
Wirkstoff

| Wirkstoff | Aufwand- menge (g/ha) | Wei- zen | Abu- tilon | Galin- soga | Ipo- moea | Matri- caria | Sola- num | Xan- thium |
|--|-----------------------------|-------------|---------------|----------------|--------------|-----------------|--------------|---------------|
|  (A) (bekannt) | 250 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 70 | 0 |
|  (13) | 250 | 0 | 95 | 100 | 95 | 100 | 95 | 100 |
|  (14) | 250 | 0 | 40 | 50 | 40 | 30 | 90 | 95 |

Beispiel B

Post-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 2000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

- 15 Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik zeigen in diesem Test z.B. die Verbindungen gemäß folgender Herstellungsbeispiele:

- 20 2, 4, 13, 14, 33, 39, 41 und 43.

Tabelle A: Pre-emergence-Test/Gewächshaus - (Fortsetzung)
Wirkstoff

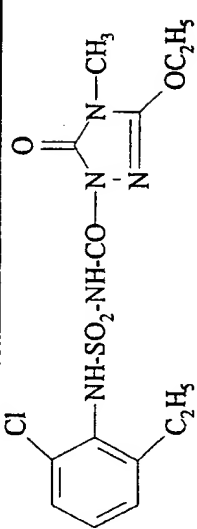
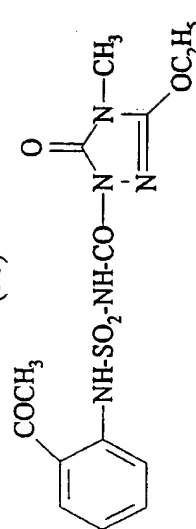
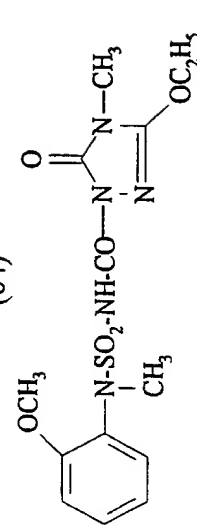
| Wirkstoff | Aufwand- menge (g/ha) | Weizen | Amaranthus | Galinsoga | Matri- caria | Stel- laria |
|--|--------------------------|--------|------------|-----------|-----------------|----------------|
|  (58) | 250 | 0 | - | 95 | 95 | 70 |
|  (64) | 250 | 30 | 95 | 95 | 60 | 60 |
|  (65) | 250 | 0 | 100 | 95 | 95 | 70 |

Tabelle A: Pre-emergence-Test/Gewächshaus - (Fortsetzung)

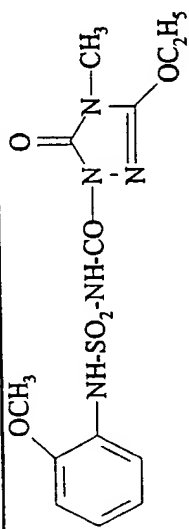
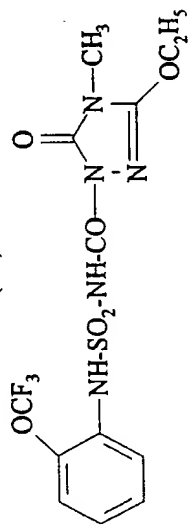
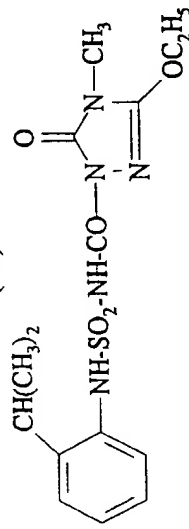
| Wirkstoff | Aufwand- menge (g/ha) | Wei- zen | Amaran- thus | Galin- soga | Matri- caria | Stel- laria |
|--|--------------------------|-------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------|
|  (41) | 250 | 0 | 30 | 95 | 95 | 90 |
|  (43) | 250 | 0 | 90 | 95 | 95 | 90 |
|  (45) | 250 | 0 | 95 | 95 | 95 | 95 |

Tabelle A: Pre-emergence-Test/Gewächshaus - (Fortsetzung)

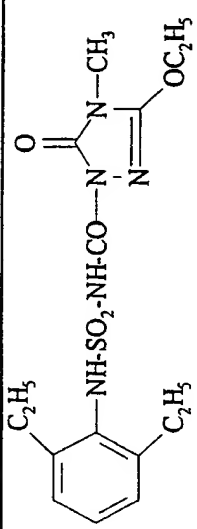
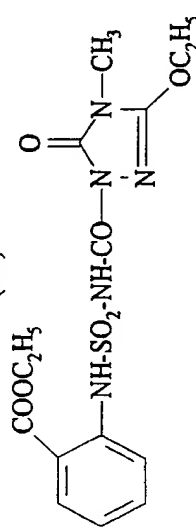
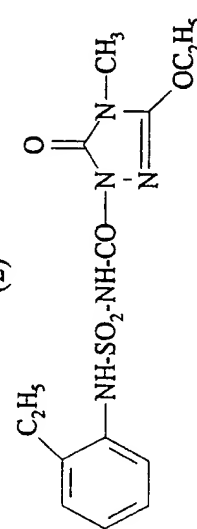
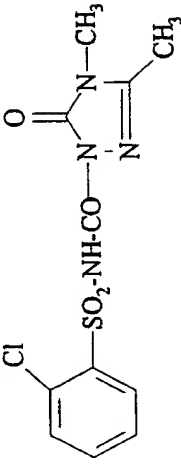
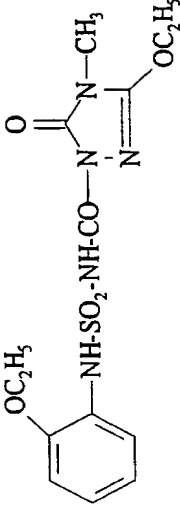
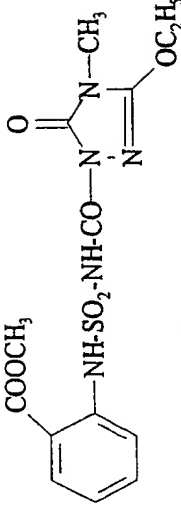
| Wirkstoff | Aufwand- menge (g/ha) | Wei- zen | Amaran- thus | Galin- soga | Matri- caria | Stel- laria |
|--|--------------------------|-------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------|
|  (33) | 250 | 0 | 95 | 95 | 90 | 90 |
|  (2) | 250 | 20 | 95 | 95 | 90 | 80 |
|  (39) | 250 | 0 | 80 | 95 | 80 | 50 |

Tabelle A: Pre-emergence-Test/Gewächshaus
Wirkstoff

| Wirkstoff | Aufwand- menge (g/ha) | Wei- zen | Amaran- thus | Galin- soga | Matri- caria | Stel- laria |
|--|--------------------------|-------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------|
|  | 250 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| (A) (bekannt) | | | | | | |
|  | 250 | 70 | 90 | 95 | 95 | 80 |
| (13) | | | | | | |
|  | 250 | 0 | 70 | 70 | 90 | 60 |
| x N(C ₂ H ₅) ₃ (4) | | | | | | |

Beispiel A

Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät und nach 24 Stunden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffs pro Flächeneinheit. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle. Es be-
15 deuten:

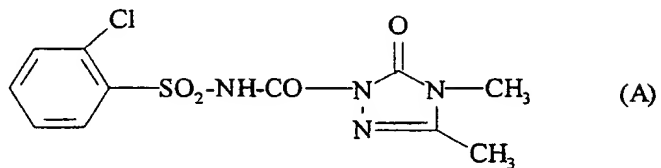
0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

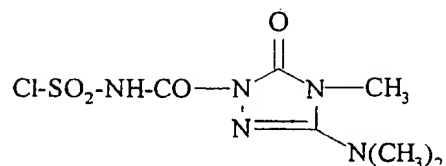
- Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik zeigen in diesem Test z.B. die Verbindungen gemäß folgender Herstellungsbeispiele:
20 2, 4, 13, 33, 39, 41, 43, 45, 58, 64 und 65.

Anwendungsbeispiele:

In den Anwendungsbeispielen wird die folgende Verbindung (A) als Vergleichssubstanz herangezogen:

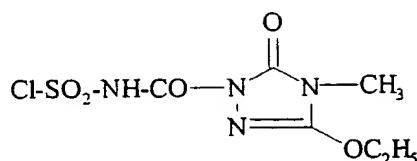


2-(2-Chlor-phenylsulfonylaminocarbonyl)-4,5-dimethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-
5 3-on (bekannt aus EP-A 341489).

Beispiel (II-3)

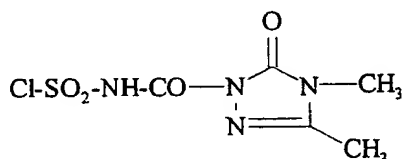
- 10 g (72 mMol) 5-Dimethylamino-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 250 ml Methylenchlorid bei -10°C bis 0°C langsam mit 9,9 g (72 mMol) Chlorsulfonylisocyanat versetzt. Nach dreißigminütigem Rühren hat die Reaktionsmischung
- 5 Raumtemperatur (20°C) erreicht. Das Lösungsmittel wird dann durch Destillation im Wasserstrahlvakuum entfernt.

Man erhält 19,1 g (94% der Theorie) 2-Chlorsulfonylamino-5-dimethylamino-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als amorphen Rückstand.

Ausgangsstoffe der Formel (II):Beispiel (II-1)

28,8 g (0,20 Mol) 5-Ethoxy-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 250 ml Methylenchlorid vorgelegt und auf -10°C abgekühlt. Zu dieser Mischung werden 28,3 g (0,20 Mol) Chlorsulfonylisocyanat gegeben und das Reaktionsgemisch wird ohne Kühlen 30 Minuten gerührt. Dann wird das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum sorgfältig abdestilliert.

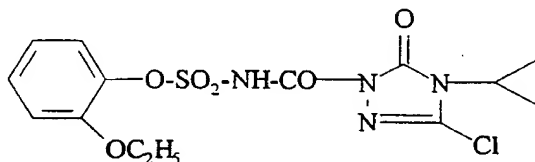
Man erhält 53 g (93% der Theorie) 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-5-ethoxy-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als kristallinen Rückstand vom Schmelzpunkt 106°C.

Beispiel (II-2)

22,6 g (0,20 Mol) 4,5-Dimethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 250 ml Methylenchlorid vorgelegt und auf -10°C abgekühlt. Dann werden 28,3 g (0,20 Mol) Chlorsulfonylisocyanat dazu gegeben und die Mischung wird 20 Minuten bei -5°C bis -10°C gerührt, wobei zunächst eine klare Lösung entsteht und dann das Produkt sich kristallin abscheidet. Es wird durch Absaugen isoliert.

Man erhält 45 g (88% der Theorie) 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-4,5-dimethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 150°C (unter Zersetzung).

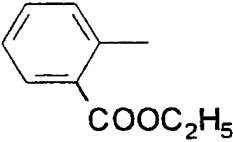

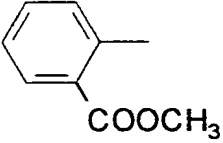

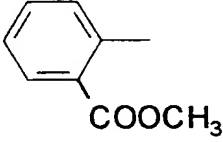
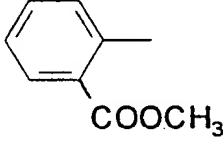
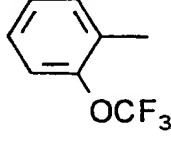
Die in Tabelle 2 als Beispiel 183 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise auch wie folgt hergestellt werden [Verfahren (c)]:



- 2,0 g (12,5 mMol) 4-Cyclopropyl-5-chlor-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 40 ml Acetonitril gelöst und unter Rühren mit 4,3 g (26,9 mMol) (2-Ethoxy-phen-
5 oxy)-sulfonylisocyanat versetzt. Das Reaktionsgemisch wird 6 Stunden bei 20°C gerührt. Dann wird im Vakuum eingengt, der Rückstand mit Diethylether verrührt und das kristalline Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 4,9 g (97% der Theorie) 2-(2-Ethoxy-phenyloxy)-sulfonylaminocarbonyl-4-cyclopropyl-5-chlor-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 121°C.

- 77 -

| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|---|--------------------------------|--|--------------------|
| 322 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 137°C |
| 323 | NH |  | SCH ₃ |  | Fp.: 166°C |
| 324 | NH |  | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 159°C |
| 325 | NH | -NHCOO- C ₂ H ₅ *) | OCH ₃ |  | |
| 326 | NH | -NHCOO- C ₂ H ₅ *) | OCH ₃ |  | |

*) $\frac{OC_2H_4-}{OC_2H_5} = -OCH_2CH_2OCH_2CH_3$; $\frac{OC_2H_4-}{OCH_3} = -OCH_2CH_2OCH_3$;

$\frac{OC_2H_4-}{OC_3H_7-i} = -OCH_2CH_2OCH(CH_3)_2$;

$\frac{-NHCOO-}{C_2H_5} = -NHCOOCH_2CH_3$.

Tabelle 2: (Fortsetzung)

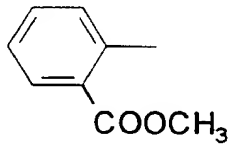
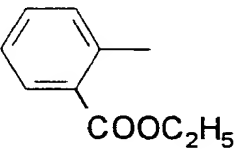
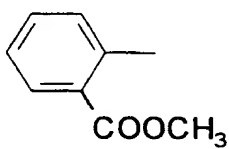
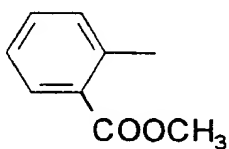
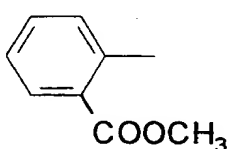

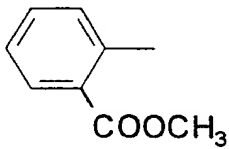

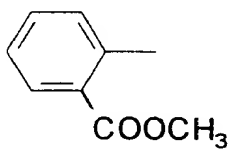
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|---|--------------------------------|--|--------------------|
| 315 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 163°C |
| 316 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 146°C |
| 317 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 152°C |
| 318 | NH | CH ₃ | Cl |  | Fp.: 147°C |
| 319 | NH | CH ₃ | Br |  | Fp.: 148°C |
| 320 | NH |  | Br |  | Fp.: 153°C |
| 321 | NH |  | Cl |  | Fp.: 155°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

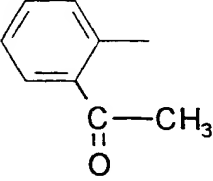
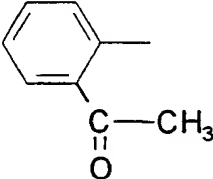
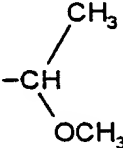
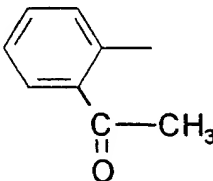
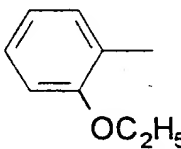
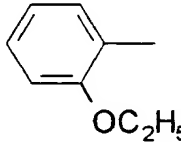
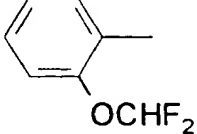
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|--|---|--------------------|
| 309 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ | *)  | Fp.: 85°C |
| 310 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i | *)  | Fp.: 91°C |
| 311 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 112°C |
| 312 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 146°C |
| 313 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 126°C |
| 314 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 133°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|--|----------------|--------------------|
| 303 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i *) | | (Öl) |
| 304 | NH | CH ₃ | | | Fp.: 109°C |
| 305 | NH | CH ₃ | | | Fp.: 123°C |
| 306 | NH | CH ₃ | | | Fp.: 132°C |
| 307 | NH | CH ₃ | | | Fp.: 129°C |
| 308 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) | | Fp.: 103°C |

- 73 -

Tabelle 2: (Fortsetzung)

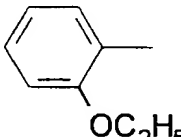
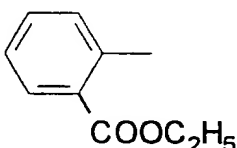
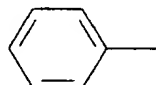
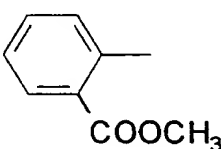
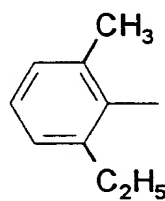
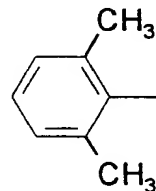
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|---|---|--------------------|
| 297 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i | *)  | Fp.: 59°C |
| 298 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i | *)  | Fp.: 71°C |
| 299 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i | *)  | Fp.: 85°C |
| 300 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i | *)  | Fp.: 91°C |
| 301 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i | *)  | Fp.: 114°C |
| 302 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i | *)  | Fp.: 109°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

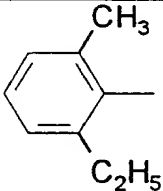
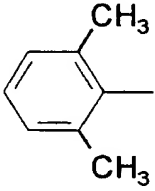
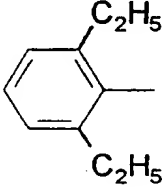
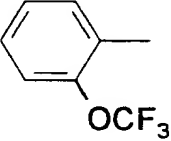
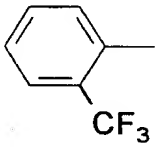
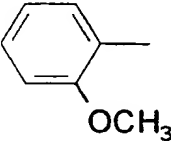
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|--|--|--------------------|
| 291 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 135°C |
| 292 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 141°C |
| 293 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 79°C |
| 294 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i *) |  | Fp.: 102°C |
| 295 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i *) |  | Fp.: 115°C |
| 296 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₃ H ₇ -i *) |  | Fp.: 68°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

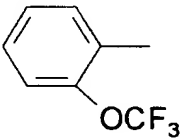
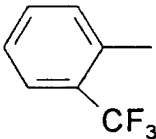
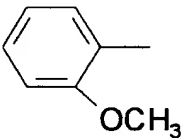
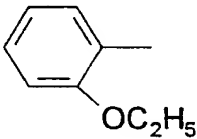
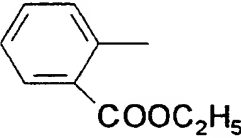
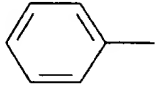
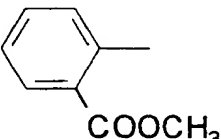
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|---|--|--------------------|
| 284 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 103°C |
| 285 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 106°C |
| 286 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 105°C |
| 287 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 115°C |
| 288 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 108°C |
| 289 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 126°C |
| 290 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OCH ₃ *) |  | Fp.: 132°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

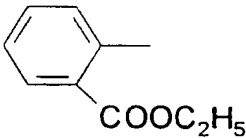
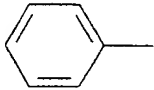
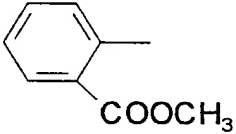
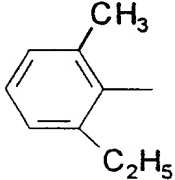
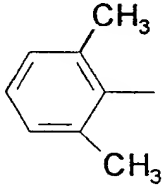
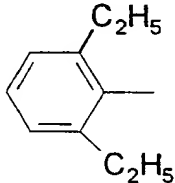
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|---|--|--------------------|
| 278 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 104°C |
| 279 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 111°C |
| 280 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 121°C |
| 281 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 112°C |
| 282 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 117°C |
| 283 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 92°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

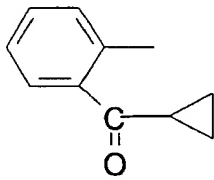
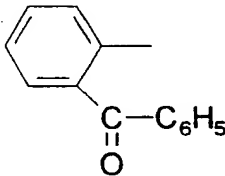
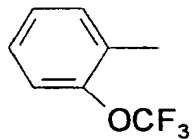
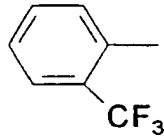
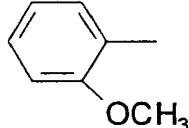
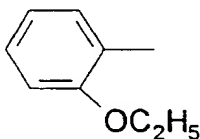
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|---|--|--------------------|
| 272 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 164°C |
| 273 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 136°C |
| 274 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 101°C |
| 275 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 79°C |
| 276 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 84°C |
| 277 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₄ - OC ₂ H ₅ *) |  | Fp.: 123°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

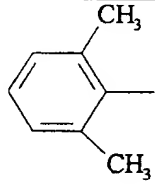
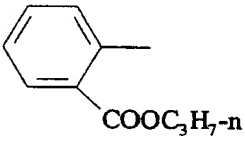
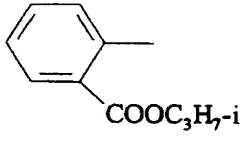
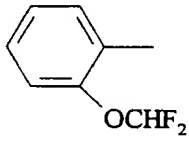
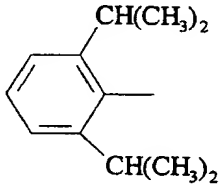
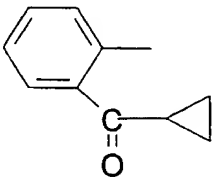

| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|---|-----------------|----------------------------------|--|--------------------|
| 265 | NH | CH ₃ | C ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 145°C |
| 266 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 135°C |
| 267 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 124°C |
| 268 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 89°C |
| 269 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 164°C |
| 270 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 157°C |
| 271 |  | CH ₃ | OC ₂ H ₅ | -SO ₂ CH ₃ | Fp.: 145°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

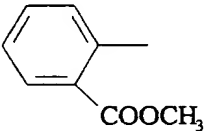

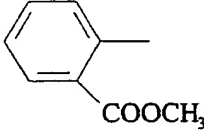
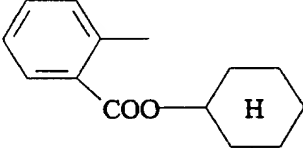

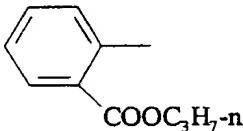
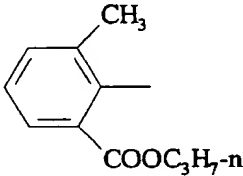
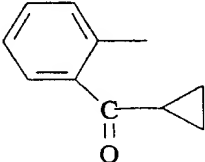
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|---|--|--------------------|
| 259 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 165°C |
| 260 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 167°C |
| 261 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 130°C |
| 262 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 139°C |
| 263 | NH | CH ₃ | O-C ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 109°C |
| 264 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 157°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

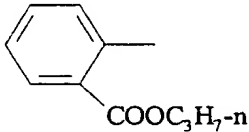
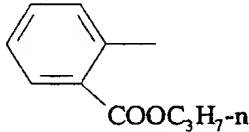
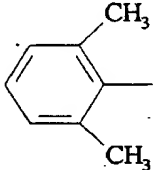
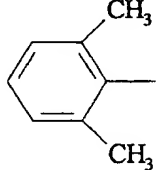
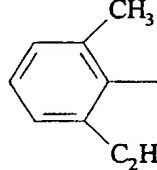

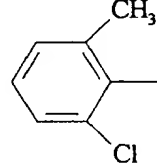
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|---|--|--------------------|
| 253 | NH | CH ₃ | O-C ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 139°C |
| 254 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 96°C |
| 255 | NH | CH ₃ | O-C ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 154°C |
| 256 | NH | CH ₃ | O-C ₂ H ₅ |  | Fp.: 165°C |
| 257 | NH | CH ₃ | O-C ₂ H ₅ |  | Fp.: 164°C |
| 258 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 155°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

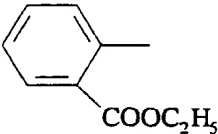
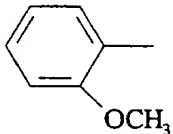
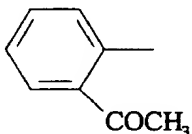
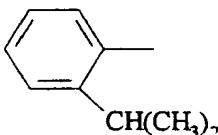
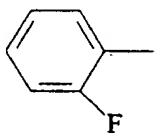
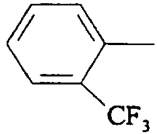
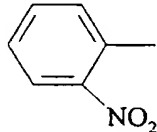
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|---------------------------------|--|--------------------|
| 246 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 142°C |
| 247 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 155°C |
| 248 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 148°C |
| 249 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 137°C |
| 250 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 144°C |
| 251 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 136°C |
| 252 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 120°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

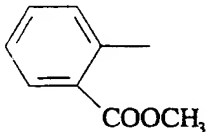

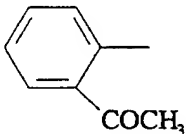

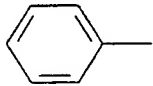
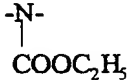
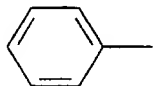
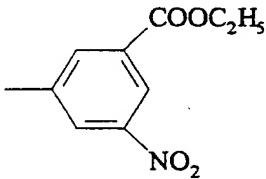
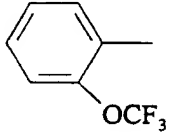
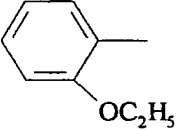
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|---|-----------------|---|--|--------------------|
| 239 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 145°C |
| 240 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 140°C |
| 241 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 146°C |
| 242 |  | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 156°C |
| 243 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 141°C |
| 244 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 148°C |
| 245 | NH | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 127°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

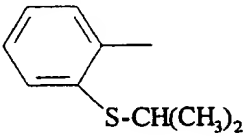
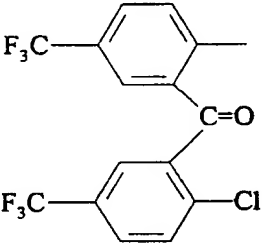
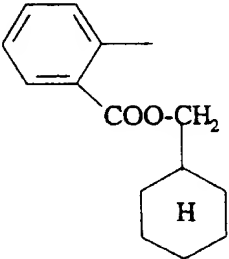

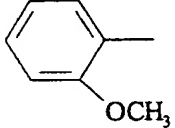
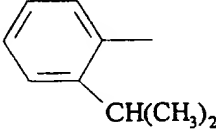
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|---|-----------------|-----------------------------------|--|--|
| 234 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 1,2-1,25; 3,15; 3,15- 3,25 ppm |
| 235 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 130°C |
| 236 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 131°C |
| 237 |  | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 121°C |
| 238 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 139°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

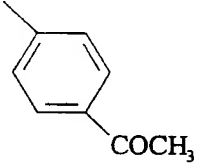
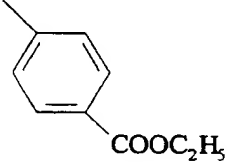
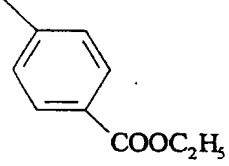
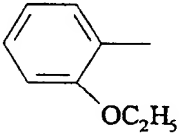
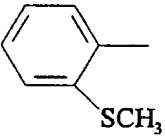
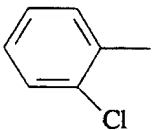
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|-----------------------------------|---|--------------------|
| 228 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 149°C |
| 229 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 138°C |
| 230 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 149°C |
| 231 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 115°C |
| 232 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 121°C |
| 233 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 123°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

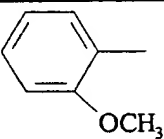
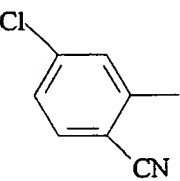
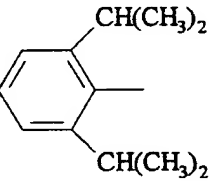

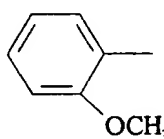

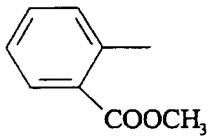

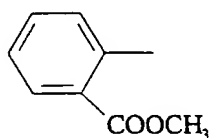
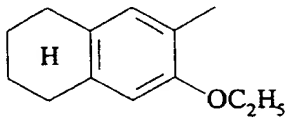
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|---|-----------------|---|--|--------------------|
| 221 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 112°C |
| 222 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 131°C |
| 223 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 156°C |
| 224 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 144°C |
| 225 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 157°C |
| 226 |  | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 136°C |
| 227 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 161°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

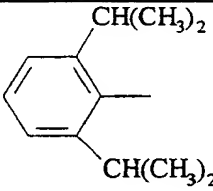
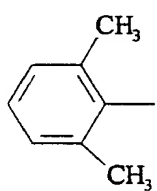
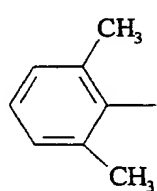

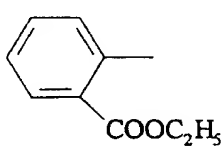

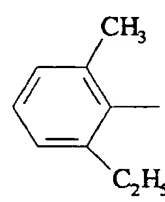
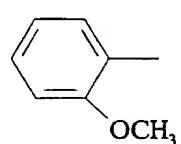
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|---|--|--------------------|
| 215 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 174°C |
| 216 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 169°C |
| 217 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 156°C |
| 218 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 106°C |
| 219 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 148°C |
| 220 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 149°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

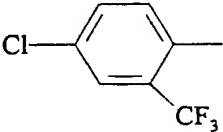
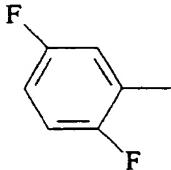
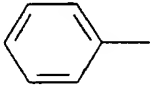

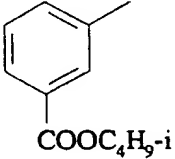
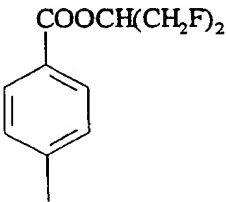
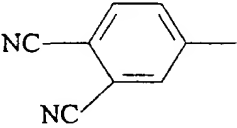
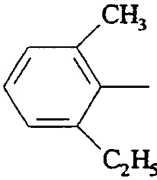
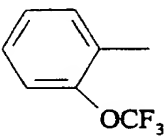
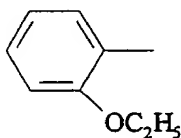
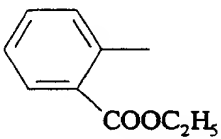
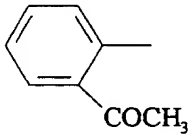
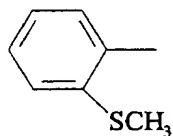
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|----------------------------------|--|---|
| 209 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 131°C |
| 210 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 172°C |
| 211 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 140°C |
| 212 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 161°C |
| 213 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 130°C |
| 214 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 4,05; 4,62- 4,64; 4,80-4,82 ppm |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|----------------------------------|--|--------------------|
| 202 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 190°C |
| 203 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 160°C |
| 204 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 161°C |
| 205 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 151°C |
| 206 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 140°C |
| 207 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 135°C |
| 208 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 124°C |

- 57 -

Tabelle 2: (Fortsetzung)

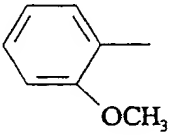
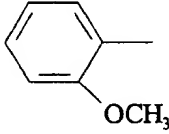
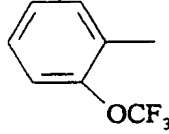
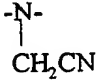
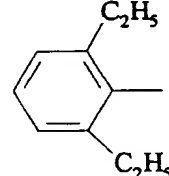
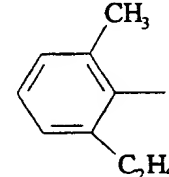
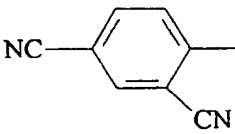
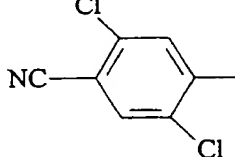
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|---|-------------------------------|-----------------------------------|--|--------------------|
| 195 | O | OCH ₃ | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 120°C |
| 196 | O | OCH ₃ | n-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 105°C |
| 197 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 132°C |
| 198 |  | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 157°C |
| 199 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 139°C |
| 200 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 140°C |
| 201 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 178°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

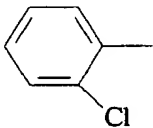

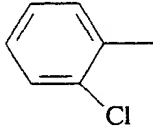
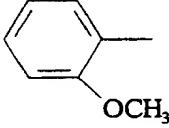
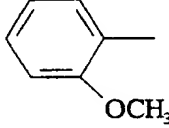

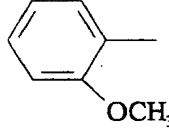

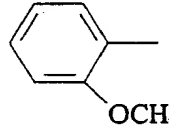

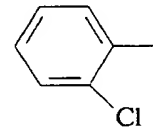
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|---|---|---------------------------------|---|--------------------|
| 188 | O | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 97°C |
| 189 | O |  | Br |  | Fp.: 120°C |
| 190 | O | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 129°C |
| 191 | O | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 146°C |
| 192 | O |  | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 108°C |
| 193 | O |  | n-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 118°C |
| 194 | O |  | n-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 99°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)


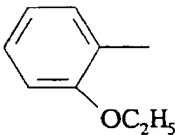

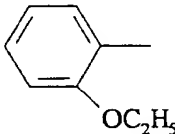

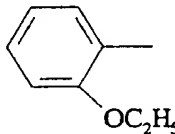
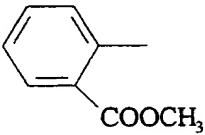

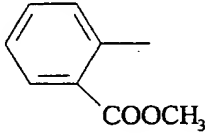
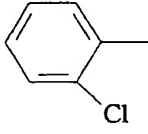
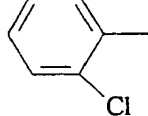
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|---|---|---------------------------------|--|--------------------|
| 181 | O |  | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 119°C |
| 182 | O |  | n-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 94°C |
| 183 | O |  | Cl |  | Fp.: 121°C |
| 184 | O | OCH ₃ | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 96°C |
| 185 | O |  | Cl |  | Fp.: 128°C |
| 186 | O | CH ₃ | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 91°C |
| 187 | O | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 139°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)


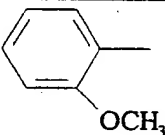

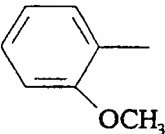
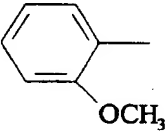
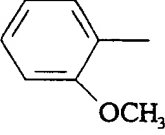

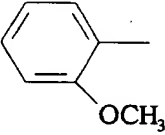
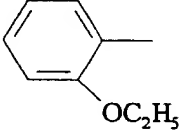
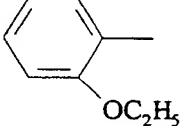
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|---|---|---------------------------------|---|--------------------|
| 174 | O |  | SCH ₃ |  | Fp.: 110°C |
| 175 | O |  | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 100°C |
| 176 | O | CH ₃ | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 132°C |
| 177 | O | CH ₃ | n-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 107°C |
| 178 | O |  | Br |  | Fp.: 137°C |
| 179 | O | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 116°C |
| 180 | O | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 103°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)


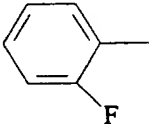

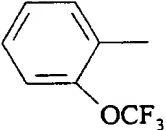

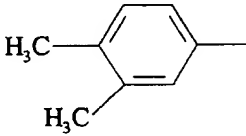
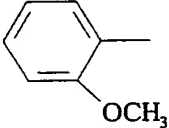
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|------------------|---|---|--|---|
| 163 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 140°C |
| 164 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 129°C |
| 165 | NCH ₃ | OCH ₃ | OCH ₃ | CH ₃ | Fp.: 154°C |
| 166 | NCH ₃ | CH ₃ | n-C ₃ H ₇ | -SO ₂ CH ₃ | Fp.: 93°C |
| 167 | NCH ₃ | CH ₃ | C ₂ H ₅ | -SO ₂ CH ₃ | Fp.: 124°C |
| 168 | NCH ₃ | CH ₃ | SCH ₃ | -SO ₂ CH ₃ | Fp.: 160°C |
| 169 | NCH ₃ | CH ₃ | SC ₂ H ₅ | -SO ₂ CH ₃ | Fp.: 116°C |
| 170 | NCH ₃ | OCH ₃ | C ₂ H ₅ | -SO ₂ CH ₃ | Fp.: 103°C |
| 171 | NCH ₃ |  | Cl | -SO ₂ CH ₃ | Fp.: 121°C |
| 172 | O | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 135°C |
| 173 | O | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 3,65-3,72; 3,85; 4,15 ppm |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

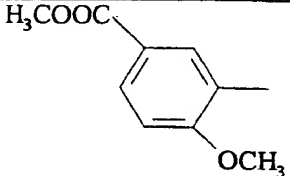
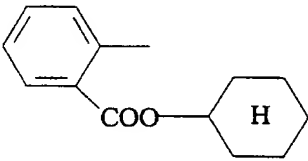
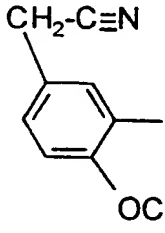
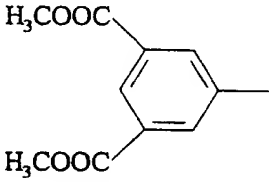
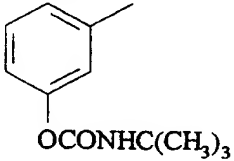
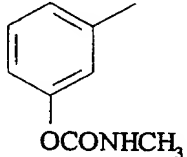
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|------------------|--|--------------------|
| 157 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 159°C |
| 158 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 129°C |
| 159 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 137°C |
| 160 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 183°C |
| 161 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 158°C |
| 162 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 155°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

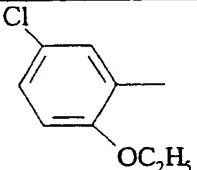
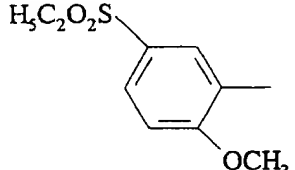
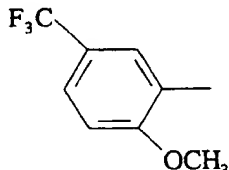
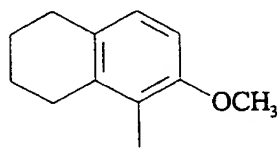
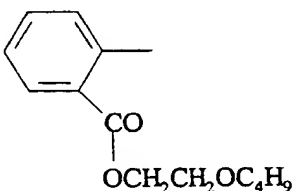
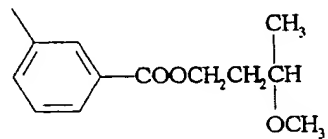
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|------------------|--|--------------------|
| 151 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 143°C |
| 152 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 118°C |
| 153 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 142°C |
| 154 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 192°C |
| 155 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 80°C |
| 156 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 107°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

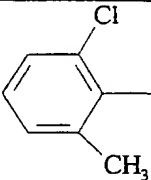
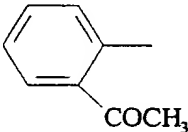
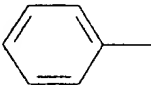
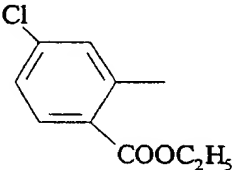
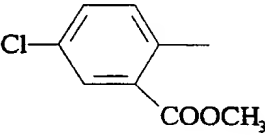
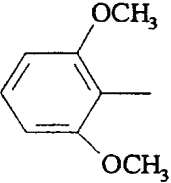
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|-----------------------------------|--|--------------------|
| 145 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 138°C |
| 146 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 150°C |
| 147 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 150°C |
| 148 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 141°C |
| 149 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 150°C |
| 150 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 170°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

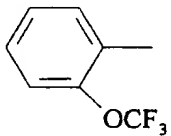
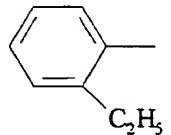
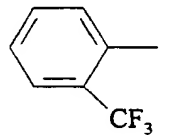
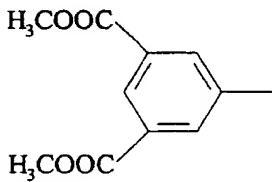
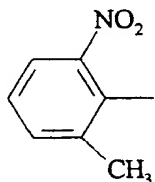
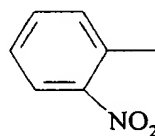
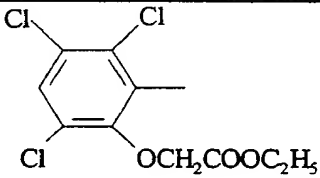
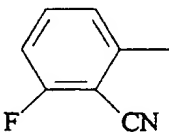
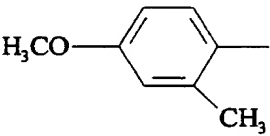
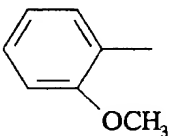
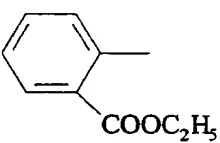
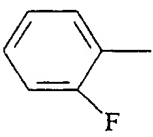
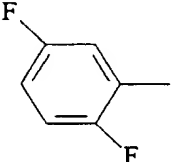
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|-----------------------------------|--|--------------------|
| 139 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 141°C |
| 140 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 128°C |
| 141 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 135°C |
| 142 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 165°C |
| 143 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 138°C |
| 144 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 120°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|-----------------------------------|---|--------------------|
| 132 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 193°C |
| 133 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 138°C |
| 134 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 138°C |
| 135 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 144°C |
| 136 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 130°C |
| 137 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 137°C |
| 138 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 146°C |

- 47 -

Tabelle 2: (Fortsetzung)

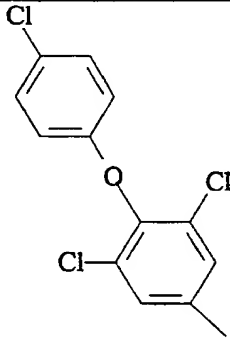
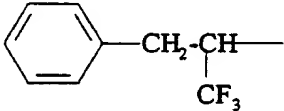
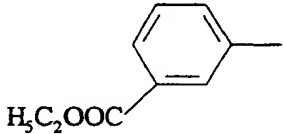
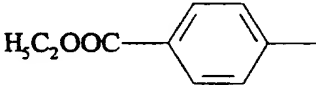
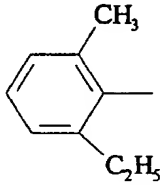
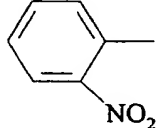
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|------------------|--|--------------------|
| 126 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 193°C |
| 127 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 190°C |
| 128 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 154°C |
| 129 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 168°C |
| 130 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 154°C |
| 131 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 135°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

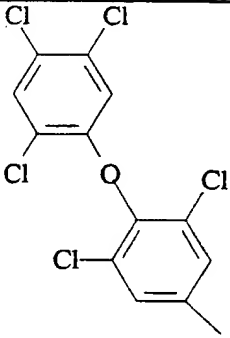
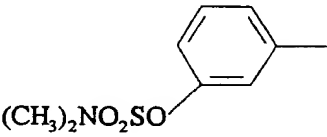
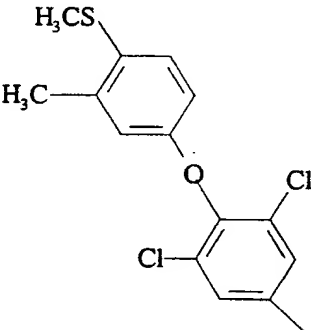
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|------------------|--|--------------------|
| 123 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 185°C |
| 124 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 147°C |
| 125 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 160°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

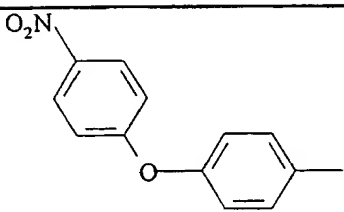
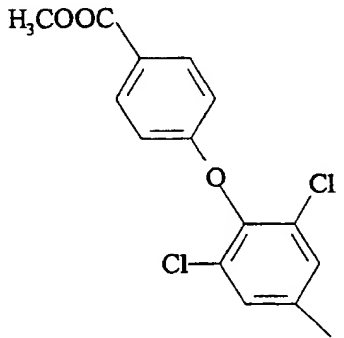
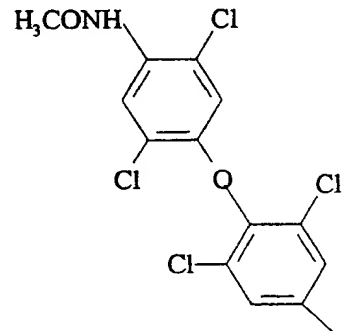
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|------------------|--|--------------------|
| 120 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 161°C |
| 121 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 172°C |
| 122 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 190°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

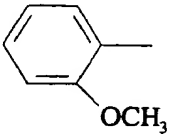
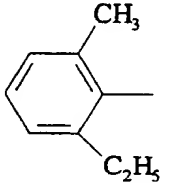
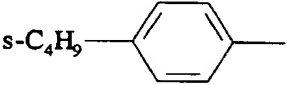
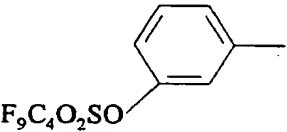
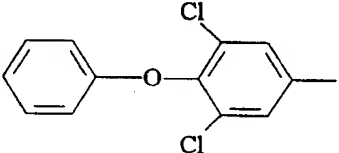
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|--|-------------------------------|------------------|--|---|
| 115 | $\begin{array}{c} \text{---N---} \\ \\ \text{C=O} \\ \\ \text{OC}_2\text{H}_5 \end{array}$ | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 135°C |
| 116 | $\begin{array}{c} \text{---N---} \\ \\ \text{CH}_2 \\ \\ \text{C=O} \\ \\ \text{OC}_2\text{H}_5 \end{array}$ | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 2,5; 3,60- 3,70; 4,10 ppm |
| 117 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 140°C |
| 118 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 3,60-3,67; 4,05; 8,30 ppm |
| 119 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 165°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

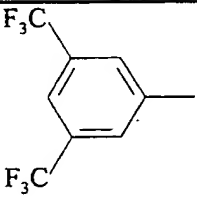
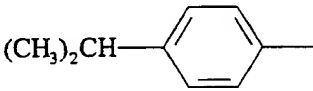
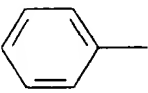
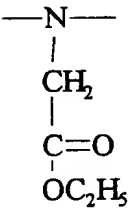
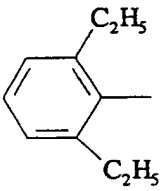
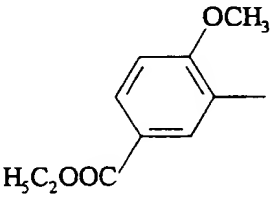
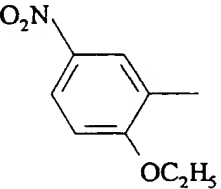
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|---|-------------------------------|--------------------------------|--|--------------------|
| 109 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 140°C |
| 110 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 170°C |
| 111 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 162°C |
| 112 |  | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 103°C |
| 113 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 125°C |
| 114 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 150°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

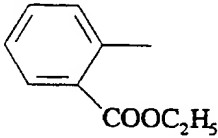
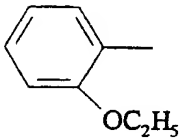
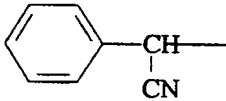
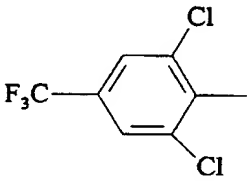
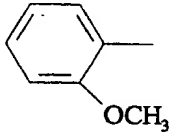
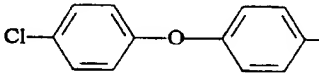
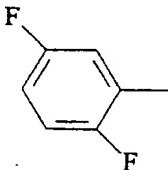
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|---------------------------------|--|--------------------|
| 102 | NH | CH ₃ | n-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 180°C |
| 103 | NH | CH ₃ | n-C ₃ H ₇ |  | Fp.: 111°C |
| 104 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 170°C |
| 105 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 135°C |
| 106 | NH | CH ₃ | OC ₆ H ₅ |  | Fp.: 146°C |
| 107 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 158°C |
| 108 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 148°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

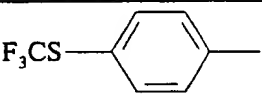
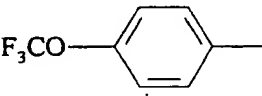
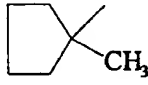
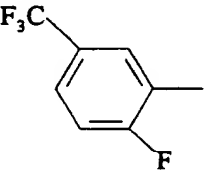
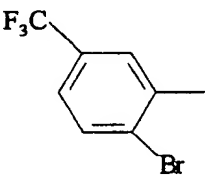

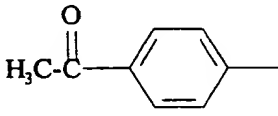
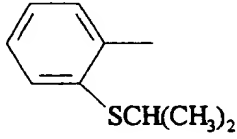
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|---------------------------------|---|---|
| 94 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 150°C |
| 95 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 125°C |
| 96 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 121°C |
| 97 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 150°C |
| 98 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 151°C |
| 99 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 133°C |
| 100 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 165°C |
| 101 | NH | CH ₃ | n-C ₃ H ₇ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 2,50-2,55; 3,25; 4,15- 4,20 ppm |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

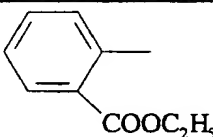
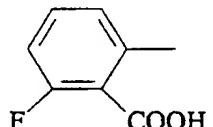
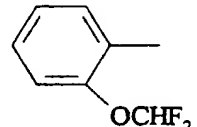
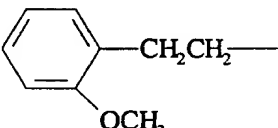
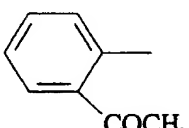
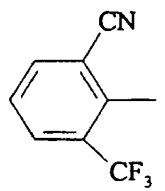
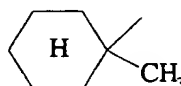
| Bsp. - Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|---------------|----|---|----------------------------------|--|--|
| 87 | NH | $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ -\text{N}=\text{C} \\ \\ \text{C}_4\text{H}_9\text{-i} \end{array}$ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 140°C |
| 88 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 169°C |
| 89 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 3,60-3,67; 3,70-3,77; 4,10 ppm |
| 90 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 120°C |
| 91 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 158°C |
| 92 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 160°C |
| 93 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 127°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

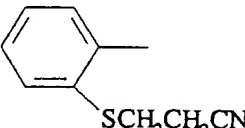
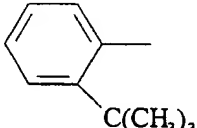
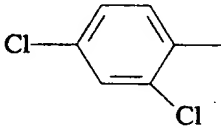
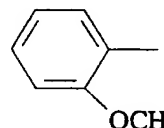
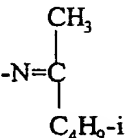
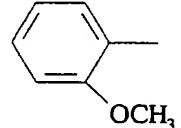
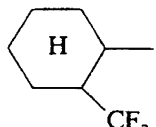
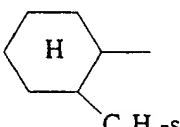
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|------------------|---|----------------------------------|--|--|
| 80 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 118°C |
| 81 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 145°C |
| 82 | NCH ₃ | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 130°C |
| 83 | NH | CH ₃ | CH ₃ |  | Fp.: 137°C |
| 84 | NH |  | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 119°C |
| 85 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 152°C |
| 86 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 3,63-3,70; 4,12 ppm |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

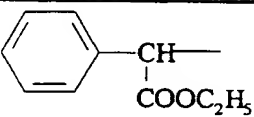
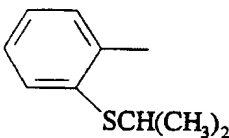
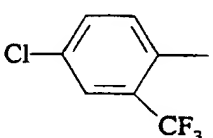
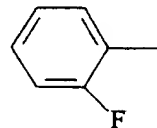
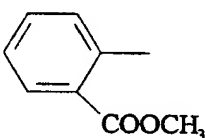
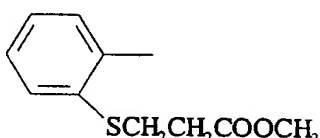
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|------------------|-------------------------------|------------------|--|--|
| 74 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 100°C |
| 75 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 1,23-1,25; 3,60-3,70; 4,08 ppm |
| 76 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 122°C |
| 77 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 148°C |
| 78 | NCH ₃ | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 3,58; 3,92; 4,13 ppm |
| 79 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 2,50-2,60; 3,67; 4,05 ppm |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

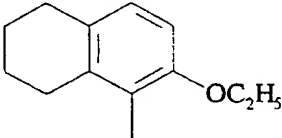
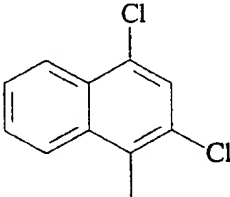
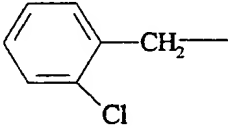
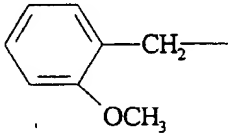
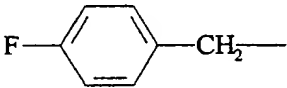
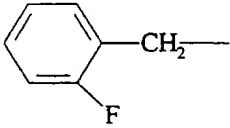
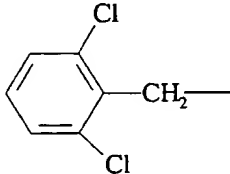
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|--------|-------------------------------|------------------|--|--------------------|
| 67 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 172°C |
| 68 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 167°C |
| 69 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 140°C |
| 70 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 130°C |
| 71 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 167°C |
| 72 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 145°C |
| 73 | -O-NH- | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 165°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

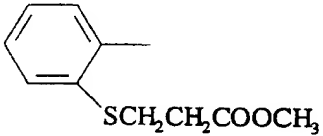
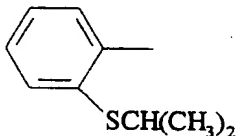

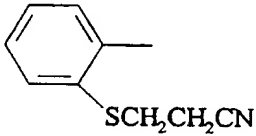
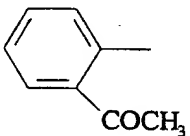
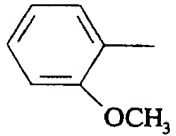
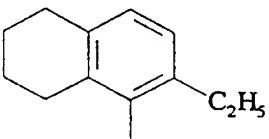
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|------------------|-------------------------------|--------------------------------|--|--|
| 60 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 2,52-2,58; 3,15; 3,70 ppm |
| 61 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 94°C |
| 62 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 163°C |
| 63 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 124°C |
| 64 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 138°C |
| 65 | NCH ₃ | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 149°C |
| 66 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 182°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

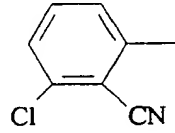
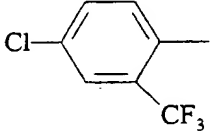
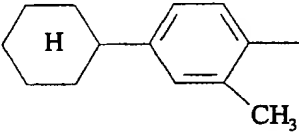
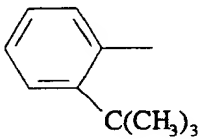
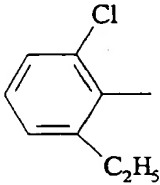
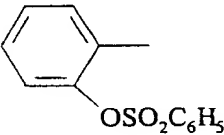
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|--------------------------------|--|--------------------|
| 54 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 170°C |
| 55 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 132°C |
| 56 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 143°C |
| 57 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 152°C |
| 58 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 170°C |
| 59 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 148°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

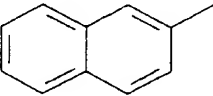
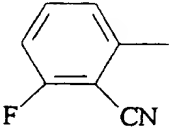
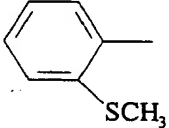
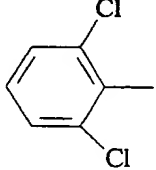
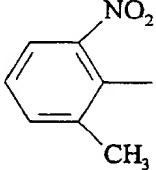
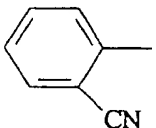
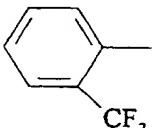
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|--------------------------------|--|--------------------|
| 47 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 158°C |
| 48 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 158°C |
| 49 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 153°C |
| 50 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 160°C |
| 51 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 144°C |
| 52 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 152°C |
| 53 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 127°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

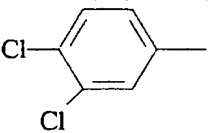
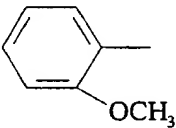
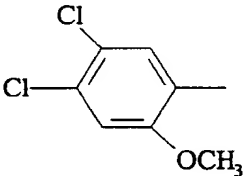
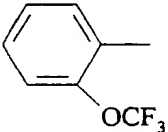
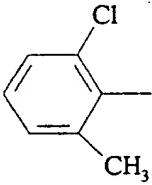
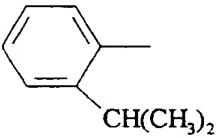
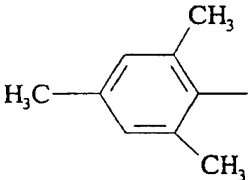
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|--------------------------------|--|--------------------|
| 40 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 171°C |
| 41 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 120°C |
| 42 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 165°C |
| 43 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 129°C |
| 44 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 170°C |
| 45 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 139°C |
| 46 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 184°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

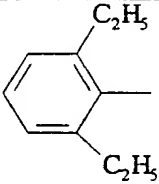
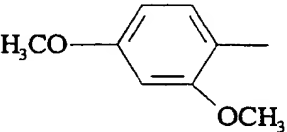
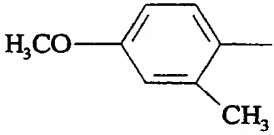
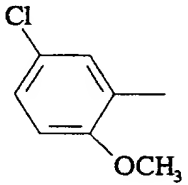
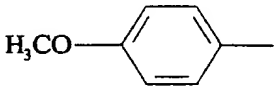
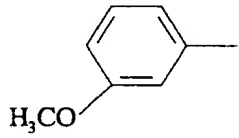
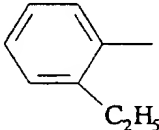
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-----------------|--------------------------------|--|--------------------|
| 33 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 149°C |
| 34 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 131°C |
| 35 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 151°C |
| 36 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 155°C |
| 37 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 163°C |
| 38 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 148°C |
| 39 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 145°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

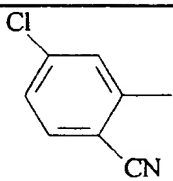
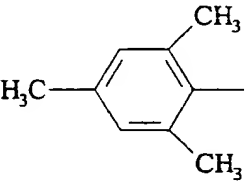
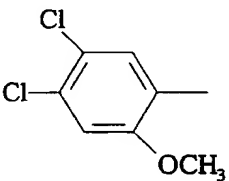
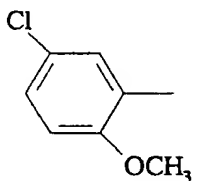
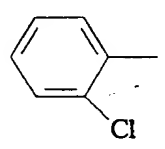
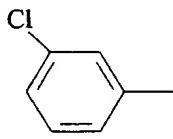
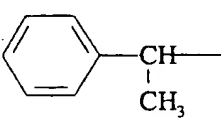
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|--------------------------------|--|--------------------|
| 26 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 160°C |
| 27 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 183°C |
| 28 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 157°C |
| 29 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 156°C |
| 30 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 160°C |
| 31 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 130°C |
| 32 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 160°C |

Tabelle 2: (Fortsetzung)

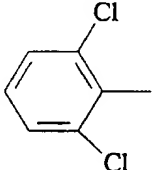
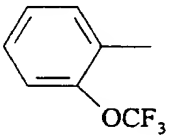
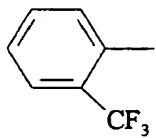
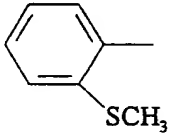
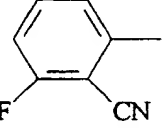
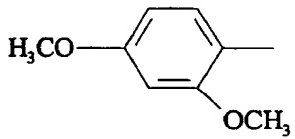
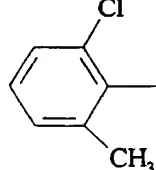
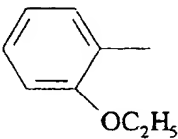
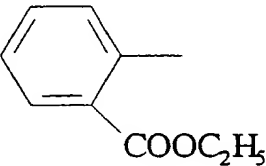
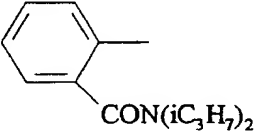
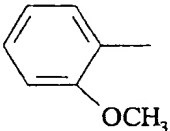
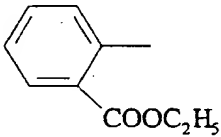
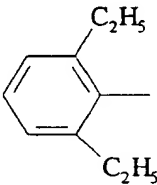
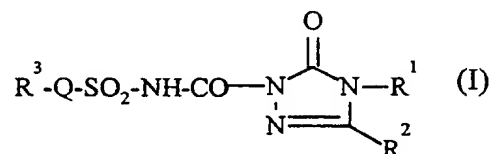
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|------------------|--|--|
| 19 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 163°C |
| 20 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | ¹ H-NMR (CDCl ₃ , δ): 3,60-3,78; 4,10; 5,30 ppm |
| 21 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 148°C |
| 22 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 133°C |
| 23 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 147°C |
| 24 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 144°C |
| 25 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 164°C |

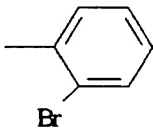
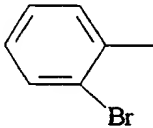
Tabelle 2: (Fortsetzung)

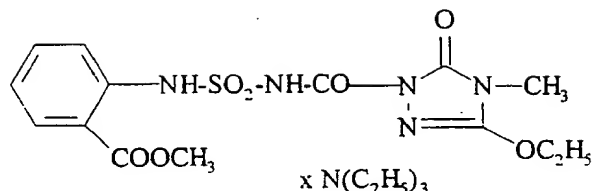
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|----|-------------------------------|--------------------------------|---|---|
| 13 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 107°C |
| 14 | NH | CH ₃ | CH ₃ |  | Fp.: 153°C |
| 15 | NH | CH ₃ | CH ₃ |  | Fp.: 140°C als Triethyl- ammonium- salz isoliert |
| 16 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 111°C |
| 17 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 145°C |
| 18 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 175°C |

Analog zu den Herstellungsbeispielen 1 bis 4 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 2 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt werden.



5 Tabelle 2: Herstellungsbeispiele für die Verbindungen der Formel (I)

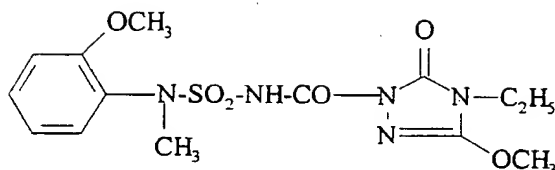
| Bsp.- Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | Physikal. Daten |
|--------------|------------------|-----------------|--------------------------------|--|--------------------|
| 5 | NH | CH ₃ | CH ₃ | s-C ₄ H ₉ | Fp.: 80°C |
| 6 | NH | CH ₃ | CH ₃ |  | Fp.: 68°C |
| 7 | NH | CH ₃ | CH ₃ | t-C ₄ H ₉ | Fp.: 234°C |
| 8 | NCH ₃ | CH ₃ | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ | Fp.: 113°C |
| 9 | NCH ₃ | CH ₃ | OC ₂ H ₅ | i-C ₃ H ₇ | Fp.: 129°C |
| 10 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 153°C |
| 11 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ | t-C ₄ H ₉ | Fp.: 148°C |
| 12 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ | s-C ₄ H ₉ | Fp.: 137°C |

Beispiel 4

(Verfahren (b))

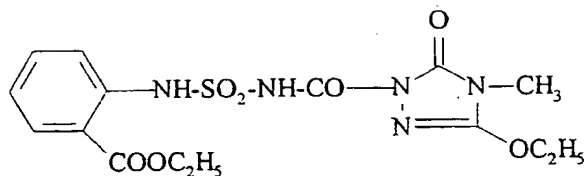
4,3 g (0,03 Mol) 4-Methyl-5-ethoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 150 ml Methylenchlorid vorgelegt und auf -10°C abgekühlt. Dann wird eine Lösung von
 5 4,3 g (0,03 Mol) Chlorsulfonylisocyanat in 20 ml Methylenchlorid dazu gegeben und das Gemisch wird 30 Minuten gerührt. Dann wird bei 20°C eine Lösung von 4,53 g (0,03 Mol) 2-Amino-benzosäure-methylester und 6,06 g (0,06 Mol) Triethylamin in 20 ml Methylenchlorid zugetropft und das Reaktionsgemisch wird weitere 30 Minuten gerührt. Anschließend wird es dreimal mit je 150 ml Wasser gewaschen, mit Natrium-
 10 sulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand mit Essigsäureethylester verrührt und das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 11 g (73% der Theorie) 2-(2-Methoxycarbonyl-phenylamino)-sulfonylaminocarbonyl-4-methyl-5-ethoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on-Triethylammonium-
 15 salz vom Schmelzpunkt 142°C (Zersetzung).

Beispiel 3

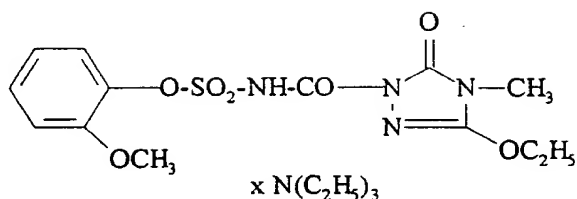
(Verfahren (a))

- 5,69 g (0,02 Mol) 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-4-ethyl-5-methoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 150 ml Methylenchlorid vorgelegt und zu dieser Mischung wird bei 20°C eine Lösung von 2,74 g (0,02 Mol) 2-Methoxy-N-methyl-anilin und 2,02 g (0,02 Mol) Triethylamin in 20 ml Methylenchlorid gegeben. Das Reaktionsgemisch wird 60 Minuten bei 20°C gerührt. Dann wird es dreimal mit je 150 ml Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt und der Rückstand aus Isopropanol umkristallisiert.
- 10 Man erhält 3,2 g (40% der Theorie) 2-(2-Methoxy-N-methyl-phenylamino)-sulfonylaminocarbonyl-4-ethyl-5-methoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 134°C.

Beispiel 2

(Verfahren (a))

- 5,69 g (0,02 Mol) 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-4-methyl-5-ethoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 150 ml Methylenchlorid vorgelegt und zu dieser Mischung wird bei 20°C eine Lösung von 6,6 g (0,04 Mol) 2-Amino-benzosäure-ethyl-ester in 20 ml Methylenchlorid gegeben. Das Reaktionsgemisch wird 60 Minuten bei 20°C gerührt. Dann wird es dreimal mit je 150 ml Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt und der Rückstand aus Isopropanol umkristallisiert.
- 10 Man erhält 5,7 g (69% der Theorie) 2-(2-Ethoxy-carbonyl-phenylamino)-sulfonylaminocarbonyl-4-methyl-5-ethoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 135°C.

Herstellungsbeispiele:Beispiel 1(Verfahren (a))

- 2,84 g (0,01 Mol) 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-4-methyl-5-ethoxy-2,4-dihydro-3H-
 5 1,2,4-triazol-3-on werden in 100 ml Methylenchlorid vorgelegt und zu dieser Mi-
 schung werden bei 20°C 1,24 g (0,01 Mol) 2-Methoxy-phenol und 2,02 g (0,02 Mol)
 Triethylamin gegeben. Das Reaktionsgemisch wird 60 Minuten bei 20°C gerührt.
 Dann wird es dreimal mit je 150 ml Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet
 und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt und der Rückstand
 10 aus Isopropanol umkristallisiert.

Man erhält 2,5 g (53% der Theorie) 2-(2-Methoxy-phenoxy)-sulfonylaminocarbonyl-
 4-methyl-5-ethoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on-Triethylammoniumsalz vom
 Schmelzpunkt 107°C.

Triazine, wie z.B. Atrazin, Cyanazin, Simazin, Simetryne, Terbutryne und Terbutylazin; Triazinone, wie z.B. Hexazinon, Metamitron und Metribuzin; Sonstige, wie z.B. Aminotriazol, Benfuresate, Bentazone, Cinmethylin, Clomazone, Clopyralid, Difenzoquat, Dithiopyr, Ethofumesate, Fluorochloridone, Glufosinate, Glyphosate, Isoxaben, Pyridate, Quinchlorac, Quinmerac, Sulphosate und Tridiphan.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 10 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 50 g und 5 kg pro ha.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

de, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise Anilide, wie z.B. Diflufenican und Propanil; Arylcarbonsäuren, wie z.B. Dichlorpicolinsäure, Dicamba und Picloram; Aryloxyalkansäuren, wie z.B. 2,4 D, 2,4 DB, 2,4 DP, Fluroxypyr, MCPA, MCPP und Triclopyr; Aryloxy-phenoxy-alkansäureester, wie z.B. Diclofop-methyl, Fenoxaprop-ethyl, Fluazifop-butyl, Haloxyfop-methyl und Quizalofop-ethyl; Azinone, wie z.B. Chloridazon und Norflurazon; Carbamate, wie z.B. Chlorpropham, Desmedipham, Phenmedipham und Propham; Chloracetanilide, wie z.B. Alachlor, Acetochlor, Butachlor, Metazachlor, Metolachlor, Pretilachlor und Propachlor; Dinitroaniline, wie z.B. Oryzalin, Pendimethalin und Trifluralin; Diphenylether, wie z.B. Acifluorfen, Bifenox, Fluoroglycofen, Fomesafen, Halosafen, Lactofen und Oxyfluorfen; Harnstoffe, wie z.B. Chlortoluron, Diuron, Fluometuron, Isoproturon, Linuron und Methabenzthiazuron; Hydroxylamine, wie z.B. Alloxydim, Clethodim, Cycloxydim, Sethoxydim und Tralkoxydim; Imidazolinone, wie z.B. Imazethapyr, Imazamethabenz, Imazapyr und Imazaquin; Nitrile, wie z.B. Bromoxynil, Dichlobenil und Ioxynil; Oxyacetamide, wie z.B. Mefenacet; Sulfonylharnstoffe, wie z.B. Amidosulfuron, Bensulfuron-methyl, Chlorimuron-ethyl, Chlorsulfuron, Cinosulfuron, Metsulfuron-methyl, Nicosulfuron, Primisulfuron, Pyrazosulfuron-ethyl, Thifensulfuron-methyl, Triasulfuron und Tribenuron-methyl; Thiolcarbamate, wie z.B. Butylate, Cycloate, Diallylate, EPTC, Esprocarb, Molinate, Prosulfocarb, Thiobencarb und Triallate;

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden Mitteln.

- 5 Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie
- 10 Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage:

- 15 z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische
- 20 Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylaryl-polyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.
- 25

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipi-

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, 5 Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen. 10

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, 15 Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich insbesondere zur selektiven Bekämpfung von dikotylen Unkräutern in monokotylen Kulturen sowohl im 20 Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren.

Darüberhinaus zeigen die erfindungsgemäßen Wirkstoffe (I) auch interessante Nebenwirkungen, nämlich eine blattinsektizide Wirkung sowie fungizide Wirkungen insbesondere gegen *Pyricularia oryzae*, z.B. am Reis, und gegen *Erysiphe graminis*.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte 25 Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

setzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Reaktionen werden im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Säureakzeptors durchgeführt, und das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der jeweils erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung erfolgt bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) jeweils nach üblichen Methoden (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Aus den erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) können gegebenenfalls Salze hergestellt werden. Man erhält solche Salze in einfacher Weise nach üblichen Salzbildungsmethoden, beispielsweise durch Lösen oder Dispergieren einer Verbindung der Formel (I) in einem geeigneten Lösungsmittel, wie z.B. Methylenchlorid, Aceton, tert-Butyl-methylether oder Toluol, und Zugabe einer geeigneten Base. Die Salze können dann - gegebenenfalls nach längerem Rühren - durch Einengen oder Absaugen isoliert werden.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defolianten, Desiccants, Krautabtötmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

inerten organischen Lösungsmittel infrage. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische und aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Pentan, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Petrolether, Benzin, Ligroin, Benzol, Toluol, Xylol, Methylenchlorid, Ethylenchlorid, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Chlorbenzol und
5 o-Dichlorbenzol, Ether wie Diethyl- und Dibutylether, Glykoldimethylether und Diglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan, Ketone wie Aceton, Methyl-ethyl-, Methyl-isopropyl- und Methyl-isobutyl-keton, Ester wie Essigsäuremethylester und -ethylester, Nitrile wie z.B. Acetonitril und Propionitril, Amide wie z.B. Dimethylformamid, Dimethylacetamid und N-Methylpyrrolidon sowie Dimethylsulfoxid,
10 Tetramethylensulfon und Hexamethylphosphorsäuretriamid.

Als Säureakzeptoren können bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) alle üblicherweise für derartige Umsetzungen verwendbaren Säurebindemittel eingesetzt werden. Vorzugsweise infrage kommen Alkalimetallhydroxide wie z.B. Natrium- und Kaliumhydroxid, Erdalkalihydroxide wie z.B. Calciumhydroxid, Alkalicarbonat und -
15 alkoholate wie Natrium- und Kaliumcarbonat, Natrium- und Kalium-tert-butylat, ferner basische Stickstoffverbindungen, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Diisobutylamin, Dicyclohexylamin, Ethyldiisopropylamin, Ethyldicyclohexylamin, N,N-Dimethylbenzylamin, N,N-Dimethyl-anilin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 2-Ethyl-, 4-Ethyl- und 5-Ethyl-2-
20 methyl-pyridin, 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), 1,8-Diazabicyclo-[5,4,0]-undec-7-en (DBU) und 1,4-Diazabicyclo-[2,2,2]-octan (DABCO).

Die Reaktionstemperaturen können bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20°C und +80°C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen -10°C
25 und +50°C.

Die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) werden die jeweils
30 benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen einge-

in welcher

R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

- mit Chlorsulfonylisocyanat, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Methylenchlorid, bei Temperaturen zwischen -20°C und $+50^{\circ}\text{C}$ umgesetzt und auf übliche Weise aufarbeitet (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden nucleophilen Verbindungen sind durch die Formel (III) allgemein definiert.

- In Formel (III) haben Q und R^3 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für Q und R^3 angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der Formel (III) sind bekannte organische Syntheschemikalien.

- Die bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Triazolinone sind durch die Formel (IV) allgemein definiert.

- In Formel (IV) haben R^1 und R^2 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R^1 und R^2 angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. EP-A 283876, EP-A 294666, EP-A 301946, EP-A 298371, EP-A 341489, EP-A 399294, EP-A 398096, EP-A 422469, EP-A 425948, EP-A 431291, EP-A 477646, DE-OS 4110795).

- Die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) zur Herstellung der neuen Verbindungen der Formel (I) werden vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Als Verdünnungsmittel kommen dabei praktisch alle

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Chlorsulfonylaminocarbonyltriazolinone sind durch die Formel (II) allgemein definiert.

5 In Formel (II) haben R^1 und R^2 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R^1 und R^2 angegeben wurden.

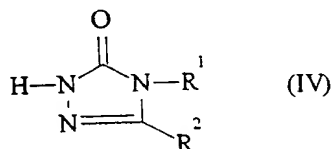
Als Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (II) seien genannt:

10 4,5-Dimethyl-, 4,5-Diethyl-, 4-Ethyl-5-methyl-, 5-Ethyl-4-methyl-, 4-Methyl-5-propyl-, 4-Ethyl-5-propyl-, 4-Cyclopropyl-5-ethyl-, 5-Cyclopropyl-4-methyl-, 5-Cyclopropyl-4-ethyl-, 4-Methyl-5-chlor-, 4-Ethyl-5-chlor-, 4-Methyl-5-brom-, 4-Ethyl-5-brom-, 4-Cyclopropyl-5-chlor-, 4-Cyclopropyl-5-brom-, 4-Methoxy-5-methyl-, 4-Ethoxy-5-methyl-, 4-Ethoxy-5-ethyl-, 4-Methoxy-5-ethyl-, 4-Methyl-5-methoxy-, 4-Ethyl-5-methoxy-, 4-Methyl-5-ethoxy-, 4-Ethyl-5-ethoxy-, 4-Methyl-5-methylthio-, 4-Ethyl-5-methylthio-, 4-Ethyl-5-ethylthio-, 4-Cyclopropyl-5-methoxy-, 4-Cyclopropyl-5-ethoxy-, 4-Cyclopropyl-5-methylthio-, 4-Cyclopropyl-5-ethylthio-, 4-Methoxy-5-cyclopropyl-, 4-Ethoxy-5-cyclopropyl-, 4-Methoxy-5-ethoxy-, 4,5-Dimethoxy-, 4,5-Diethoxy-, 4-Methyl-5-dimethylamino-, 4-Ethyl-5-dimethylamino- und 4-Cyclopropyl-5-dimethylamino-2-chlorsulfonylaminocarbonyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on.

20

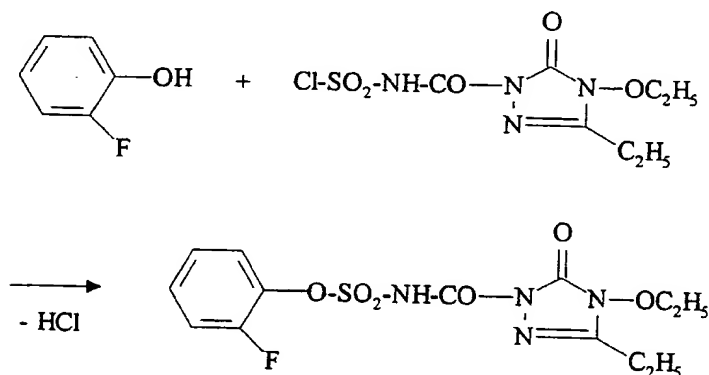
Die Chlorsulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (II) sind noch nicht aus der Literatur bekannt und sind als neue Stoffe ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Erfindung.

25 Man erhält die neuen Verbindungen der Formel (II), wenn man Triazolinone der allgemeinen Formel (IV)



- 15 -

Verwendet man beispielsweise 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-4-ethoxy-5-ethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und 2-Fluor-phenol als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) durch das folgende Formelschema skizziert werden:



- 5 Verwendet man beispielsweise 4-Ethyl-5-ethylthio-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und Chlorsulfonylisocyanat sowie anschließend 2-Amino-benzoesäuremethylester als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

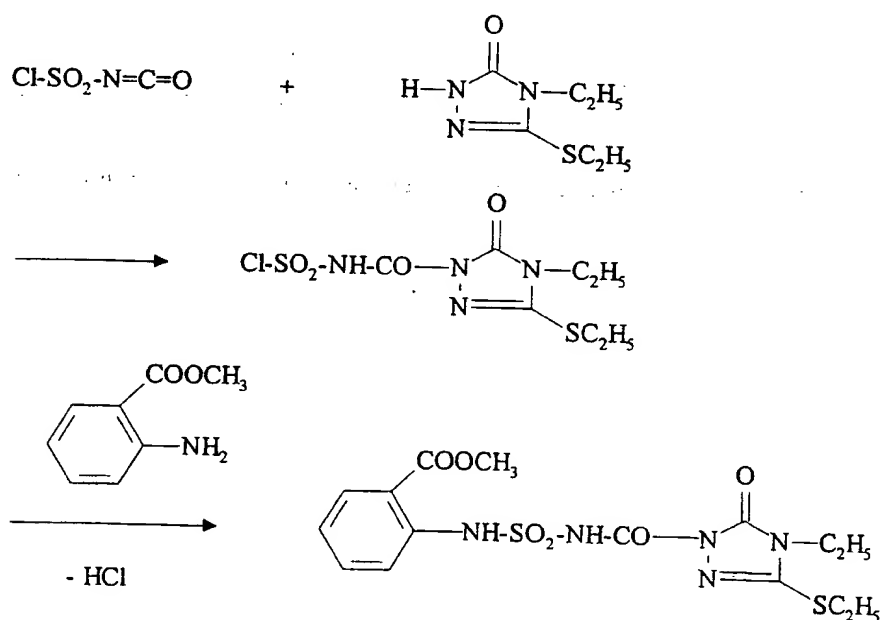


Tabelle 1: (Fortsetzung)

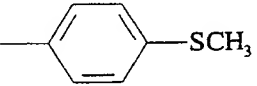
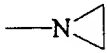
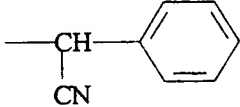
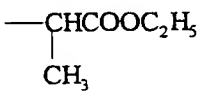
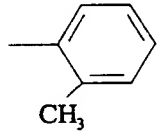
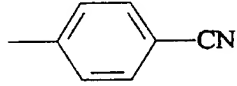
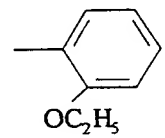
| Q | R ¹ | R ² | R ³ |
|----|-------------------------------|--|---|
| NH | C ₂ H ₅ | N(CH ₃) ₂ |  |
| NH | C ₂ H ₅ |  |  |
| O | C ₂ H ₅ | Cl |  |
| NH | CH ₃ | Br |  |
| NH | CH ₃ | i-OC ₃ H ₇ |  |
| O | C ₂ H ₅ | N(CH ₃) ₂ |  |
| NH | CH ₃ | -CH ₂ SC ₂ H ₅ | -CH ₂ CH ₂ OC ₂ H ₅ |

Tabelle 1: (Fortsetzung)

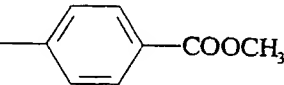
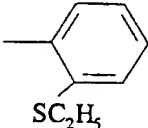
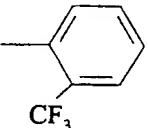

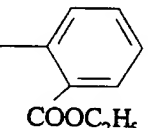
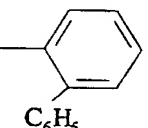

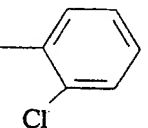

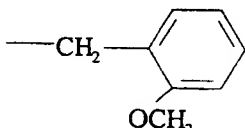


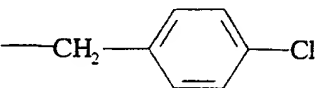
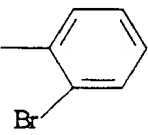
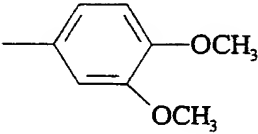

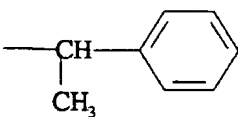

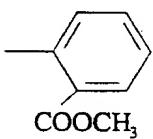
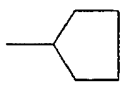
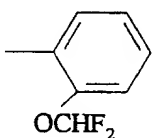
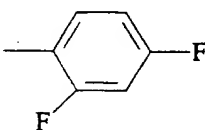
| Q | R ¹ | R ² | R ³ |
|----|---|---|---|
| O | OC ₂ H ₅ | C ₂ H ₅ |  |
| NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  |
| NH | C ₂ H ₅ | OC ₂ H ₅ |  |
| NH | CH ₃ |  |  |
| NH | CH ₃ | CH ₃ |  |
| NH | C ₂ H ₅ |  |  |
| NH |  | OCH ₃ |  |
| NH | OCH ₃ |  | -CH ₂ COOC ₂ H ₅ |

Tabelle 1: (Fortsetzung)

| Q | R ¹ | R ² | R ³ |
|------------------|---|--------------------------------|---|
| NH |  | C ₂ H ₅ |  |
| NH | C ₂ H ₅ | SCH ₃ |  |
| NH | C ₂ H ₅ | OC ₂ H ₅ |  |
| NCH ₃ | OCH ₃ | OCH ₃ | n-C ₄ H ₉ |
| NH |  | SCH ₃ |  |
| NH |  | OC ₂ H ₅ |  |
| NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  |
| NCH ₃ | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  |
| NH | C ₂ H ₅ | SC ₂ H ₅ |  |

- 11 -

oder Alkylamino, sind auch dann, wenn dies nicht ausdrücklich angegeben ist, geradkettig oder verzweigt.

Halogen steht im allgemeinen für Fluor, Chlor, Brom oder Iod, vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, insbesondere für Fluor oder Chlor.

- 5 Beispiele für die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) sind in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführt.

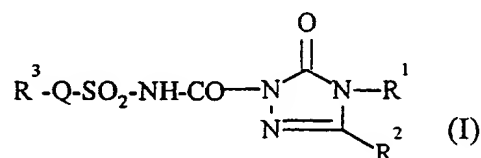
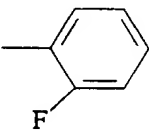

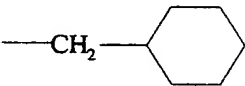

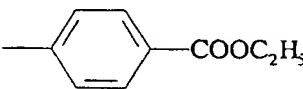


Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

| Q | R ¹ | R ² | R ³ |
|------------------|--------------------------------|---|---|
| O | CH ₃ | C ₂ H ₅ | n-C ₃ H ₇ |
| NH | CH ₃ | C ₂ H ₅ | i-C ₃ H ₇ |
| O | C ₂ H ₅ | C ₂ H ₅ |  |
| NH | OCH ₃ | n-C ₃ H ₇ | i-C ₄ H ₉ |
| NH | OC ₂ H ₅ | CH ₃ |  |
| NCH ₃ | CH ₃ | i-C ₃ H ₇ |  |
| NH | C ₂ H ₅ |  |  |

- ormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiert sind), durch Acetyl, Cyclopropylcarbonyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl (welche gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Methoxy oder Ethoxy substituiert sind) substituiertes Phenyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Naphthyl oder Tetralinyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Naphthylmethyl, Naphthylethyl, Tetralinylmethyl oder Tetralinylethyl steht,
- 5
- 10 R⁴ für Wasserstoff, Cyano, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Difluormethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylethyl, Allyl, Propargyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methoxy, Ethoxy, Allyloxy oder Benzyloxy steht oder für die Gruppierung Q¹-R⁵
- 15 steht, worin
- Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und
- R⁵ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl oder Propyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Phenyl steht.
- 20

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- bzw. Zwischenprodukte. Diese Restdefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

25

Die bei den Restdefinitionen genannten Kohlenwasserstoffreste, wie Alkyl, Alkenyl oder Alkinyl, auch in Kombinationen mit Heteroatomen, wie in Alkoxy, Alkylthio

- 5 Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methylthiomethyl, Ethylthiomethyl, Methylthioethyl oder Ethylthioethyl, für Cyclopropyl, Difluor-
cyclopropyl oder Dichlorcyclopropyl, für Phenyl oder Benzyl, für Methoxy,
Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für Methoxymethoxy, Ethoxymethoxy, Methoxy-
ethoxy oder Ethoxyethoxy, für Phenoxy oder Benzyloxy, für Methylthio, Ethyl-
thio, n- oder i-Propylthio, Allylthio, Propargylthio, Cyclopropylmethylthio, Me-
thylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Phenylthio oder Ben-
zylthio, für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Phenylamino oder
Benzylamino, für Dimethylamino, Diethylamino, Dipropylamino, Methylethyl-
10 amino, Methylpropylamino, für Aziridino oder für jeweils gegebenenfalls durch
Methyl oder Ethyl substituiertes Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino steht,
- 15 R³ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy, Ethoxy, Meth-
oxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl,
n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Me-
thyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substitu-
iertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl,
Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Cyclopropylethyl,
Cyclobutylethyl, Cyclopentylethyl oder Cyclohexylethyl, für gegebenenfalls
20 durch Fluor oder Chlor substituiertes Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Propyl-
sulfonyl oder Butylsulfonyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom,
Cyano, Carboxy, Nitro, durch Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio,
Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl (wel-
che jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy, Ethoxy,
25 Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiert sind), durch Methylsulfo-
nyloxy, Ethylsulfonyloxy, Methylaminosulfonyloxy, Ethylaminosulfonyloxy, Di-
methylaminosulfonyloxy, Diethylaminosulfonyloxy, Trifluormethylsulfonyloxy,
Dimethylaminocarbonyl oder Diethylaminocarbonyl, durch Cyclohexyl oder
Cyclohexylmethyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Chlor, Methyl oder
Ethyl substituiert sind) durch Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Phenylsulfonyl,
30 Phenylsulfonyloxy, Phenylamino, Phenylcarbonyl, Phenylmethyl oder
Phenylethyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Nitro,
Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Triflu-

nyl, für C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, für C₁-C₆-Alkoxy, C₃-C₆-Alkenyloxy, Benzoyloxy, Phenoxy oder Di-(C₁-C₄-alkoxy)-(thio)phosphoryl steht oder für die nachstehende Gruppierung Q¹-R⁵ steht, worin

Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und

5 R⁵ für gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder für gegebenenfalls durch Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Phenyl steht.

10 Gegenstand der Erfindung sind weiter vorzugsweise Natrium-, Kalium-, Magnesium-, Calcium-, Ammonium-, C₁-C₄-Alkyl-ammonium-, Di-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, Tri-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, C₅- oder C₆-Cycloalkyl-ammonium- und Di-(C₁-C₂-alkyl)-benzyl-ammonium-Salze von Verbindungen der Formel (I), in welcher Q, R¹, R² und R³ die oben vorzugsweise angegebenen Bedeutungen haben.

15 Gegenstand der Erfindung sind insbesondere Verbindungen der Formel (I), in welcher

Q für Sauerstoff oder die Gruppierung $\begin{array}{c} \text{---N---} \\ | \\ \text{R} \end{array}$ steht,

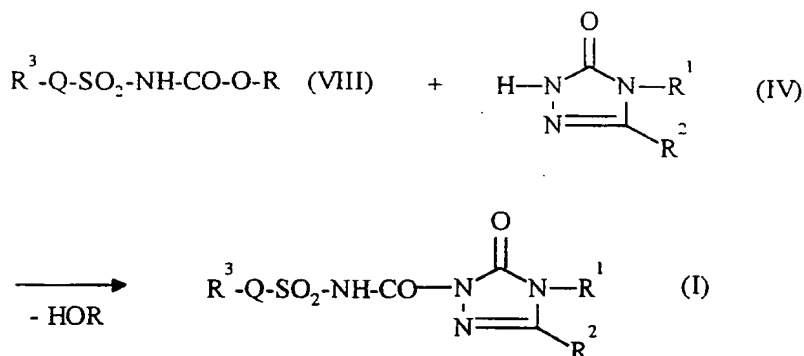
20 R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für C₃-C₈-Alkylidenamino, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Dichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Trifluorethyl, Trichlorethyl, Chlordifluorethyl, Tetrafluorethyl, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, für Allyl, Chlorallyl, Dichlorallyl, Propargyl, für Cyclopropyl, Benzyl oder Phenyl, für Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für Allyloxy, n- oder i- oder s-Butoxy, für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, für Cyclopropylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetylamino, Methoxycarbonylamino oder Ethoxycarbonylamino steht,

25 R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Fluor, Chlor, Brom, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Cyclopropylmethyl,

- Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenylamino oder Benzylamino, für Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, oder für jeweils gegebenenfalls durch C₁-C₄-Alkyl substituiertes Aziridino, Pyrrolidino oder Morpholino steht,
- 5 R³ für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkynyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen
- 10 substituiertes C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₆-Alkylaminosulfonyl oder Di-(C₁-C₄-alkyl)aminosulfonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, Nitro, durch C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiert sind),
- 15 durch C₁-C₄-Alkylsulfonyloxy, C₁-C₄-Alkylaminosulfonyloxy, Di-(C₁-C₄-alkyl)aminosulfonyloxy, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyloxy, Di-(C₁-C₄-alkyl)aminocarbonyl oder C₁-C₄-Alkylaminocarbonyloxy, durch C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sind), durch Phenyl, Phenoxy, Phenylthio,
- 20 Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylamino, Phenylcarbonyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-amino substituiert sind), durch C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₃-C₆-Cycloalkylcarbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl (welche jeweils
- 25 gegebenenfalls durch Halogen, C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₁-C₄-Alkoxy substituiert sind) substituiertes Phenyl, Naphthyl, Tetralinyl, Phenyl-C₁-C₄-alkyl, Naphthyl-C₁-C₄-alkyl oder Tetralinyl-C₁-C₄-alkyl steht,
- 30 R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alki-

- Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Phenyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₆-Alkenyloxy, für gegebenenfalls durch Fluor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₄-Alkylamino, C₃-C₆-Cycloalkylamino oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, für C₁-C₆-Alkanoylamino oder für C₁-C₆-Alkoxycarbonylamino steht,
- 5
- R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Halogen, für gegebenenfalls durch
- 10 Fluor, Chlor, Brom Cyano, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl oder C₂-C₆-Alkenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für Cyclohexenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy
- 15 und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkyl-sulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₆-Alkenyloxy, C₃-C₆-Alkinyloxy oder C₃-C₆-Cycloalkyloxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenoxy
- 20 oder Benzyloxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₃-C₆-Alkenylthio, C₃-C₆-Alkinylthio oder C₃-C₆-Cycloalkylthio, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenylthio oder Benzylthio, für C₁-C₆-Alkylamino oder C₃-C₆-Alkenylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy,
- 25
- 30

- 5 -

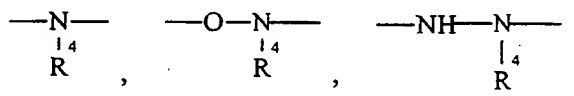


Die neuen Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I) zeichnen sich durch starke herbizide Wirksamkeit aus.

Überraschenderweise zeigen die neuen Verbindungen der Formel (I) erheblich stärkere herbizide Wirkung als das strukturell ähnliche bekannte 4,5-Dimethyl-2-(2-chlorphenylsulfonyl-aminocarbonyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on.

Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise Verbindungen der Formel (I), in welcher

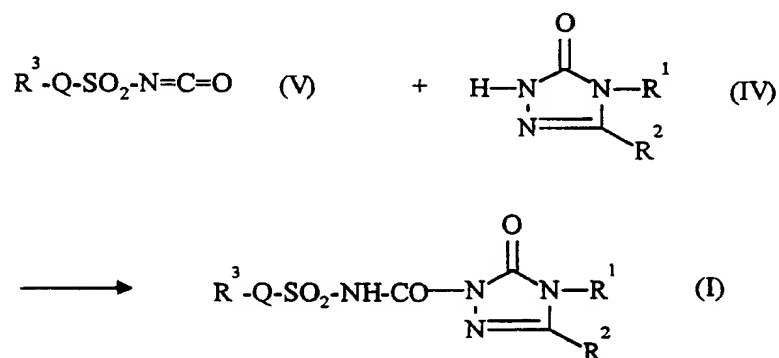
Q für Sauerstoff, Schwefel oder eine der nachstehenden Gruppierungen steht



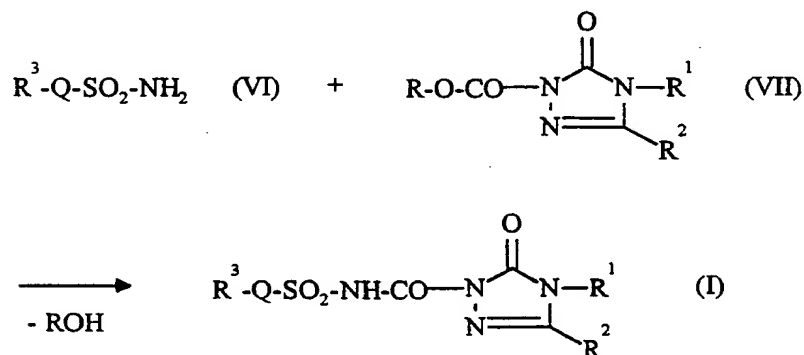
- 10 R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für C₂-C₁₀-Alkylidenamino, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylcarbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkynyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio,

Weitere mögliche Herstellungsmethoden für die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) sind nachstehend aufgeführt, wobei jeweils Q, R¹, R² und R³ die oben angegebene Bedeutung haben:

- (c) Umsetzung von Isocyanaten der Formel (V) mit Triazolinonen der Formel (IV):



- 5 (d) Umsetzung von Aminosulfonylverbindungen der Formel (VI) mit Oxycarbonyl-triazolinonen der Formel (VII) (R: Alkyl, Aralkyl, Aryl):



- (e) Umsetzung von Sulfonylurethanen der Formel (VIII) mit Triazolinonen der Formel (IV) (R: Alkyl, Aralkyl, Aryl):

- 3 -

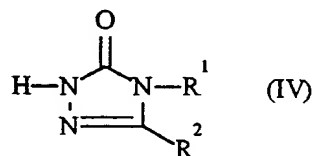
R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,
mit nucleophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III)



in welcher

- 5 Q und R^3 die oben angegebene Bedeutung haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,
oder wenn man

(b) Triazolinone der allgemeinen Formel (IV)



10 in welcher

R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

- mit Chlorsulfonylisocyanat, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt und die hierbei gebildeten Chlorsulfonylaminocarbonyltriazolinone der Formel (II) - oben - ohne Zwischenisolierung mit nucleophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III) - oben -
15 gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

und gegebenenfalls die nach Verfahren (a) oder (b) erhaltenen Verbindungen der Formel (I) nach üblichen Methoden in Salze überführt.

- 2 -

loalkenyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Cycloalkyloxy, Aryloxy, Aralkyloxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkenylthio, Alkynylthio, Cycloalkylthio, Arylthio, Aralkylthio, Alkylamino, Alkenylamino, Arylamino, Aralkylamino, Dialkylamino, Aziridino, Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino steht,

R³ für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Alkylsulfonyl, Alkylaminosulfonyl, Dialkylaminosulfonyl, Aryl, Aralkyl steht,

R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Aralkoxy, Aryloxy oder Dialkoxy(thio)phosphoryl steht oder für die nachstehende Gruppierung Q¹-R⁵ steht, worin

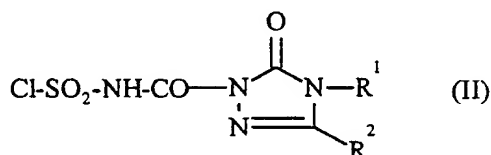
Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und

R⁵ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl oder Aryl steht,

sowie Salze von Verbindungen der Formel (I) gefunden.

Man erhält die neuen Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der Formel (I), wenn man

(a) Chlorsulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (II)



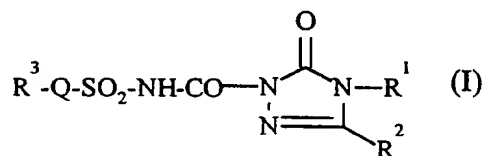
in welcher

HERBIZIDE SULFONYLAMINOCARBONYLTRIAZOLINONE

Die Erfindung betrifft neue Sulfonylaminocarbonyltriazolinone, mehrere Verfahren
5 und neue Zwischenprodukte zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

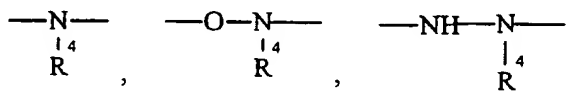
Es ist bereits bekannt, daß bestimmte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone, wie z.B.
4,5-Dimethyl-2-(2-chlor-phenylsulfonyl-aminocarbonyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-
3-on, herbizide Eigenschaften aufweisen (vgl. EP-A 341489/LeA 26062; vgl. auch
EP-A 422469/LeA 27154; EP-A 425948/LeA 27155; EP-A 431291/LeA 27156). Die
10 Wirkung dieser Verbindungen ist jedoch nicht in allen Belangen zufriedenstellend.

Es wurden nun die neuen Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel
(I),



in welcher

Q für Sauerstoff, Schwefel oder eine der nachstehenden Gruppierungen steht



15 R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkylidenamino oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino, Alkanoylamino, Alkoxycarbonylamino steht,

20 R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Halogen oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Cycloalkyl, Alkenyl, Cyc-

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Code, die zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

| | | | | | |
|----|--------------------------------|----|-----------------------------------|----|--------------------------------|
| AT | Österreich | FI | Finnland | MR | Mauritanien |
| AU | Australien | FR | Frankreich | MW | Malawi |
| BB | Barbados | GA | Gabon | NE | Niger |
| BE | Belgien | GB | Vereinigtes Königreich | NL | Niederlande |
| BF | Burkina Faso | GN | Guinea | NO | Norwegen |
| BG | Bulgarien | GR | Griechenland | NZ | Neuseeland |
| BJ | Benin | HU | Ungarn | PL | Polen |
| BR | Brasilien | IE | Irland | PT | Portugal |
| BY | Belarus | IT | Italien | RO | Rumänien |
| CA | Kanada | JP | Japan | RU | Russische Föderation |
| CF | Zentrale Afrikanische Republik | KP | Demokratische Volksrepublik Korea | SD | Sudan |
| CG | Kongo | KR | Republik Korea | SE | Schweden |
| CH | Schweiz | KZ | Kasachstan | SI | Slowenien |
| CI | Côte d'Ivoire | LI | Liechtenstein | SK | Slowakischen Republik |
| CM | Kamerun | LK | Sri Lanka | SN | Senegal |
| CN | China | LU | Luxemburg | TD | Tschad |
| CS | Tschechoslowakei | LV | Lettland | TG | Togo |
| CZ | Tschechischen Republik | MC | Monaco | UA | Ukraine |
| DE | Deutschland | MG | Madagaskar | US | Vereinigte Staaten von Amerika |
| DK | Dänemark | ML | Mali | UZ | Usbekistan |
| ES | Spanien | MN | Mongolei | VN | Vietnam |

PCTWELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

| | | |
|---|-----------|--|
| (51) Internationale Patentklassifikation ⁵ : C07D 249/12, A01N 47/38 C07D 249/14, C07F 9/6518 A01N 57/32 | A1 | (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 94/08979 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 28. April 1994 (28.04.94) |
| (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP93/02706 (22) Internationales Anmeldedatum: 4. Oktober 1993 (04.10.93) (30) Prioritätsdaten: P 42 34 801.3 15. Oktober 1992 (15.10.92) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US) : FINDEISEN, Kurt [DE/DE]; Dünfelder Strasse 28, D-51375 Leverkusen (DE). LINKER, Karl-Heinz [DE/DE]; Albert-Schweitzer-Strasse 3, D-51377 Leverkusen (DE). KLUTH, Joachim [DE/DE]; Tannenweg 9, D-40764 Langenfeld (DE). MÜLLER, Klaus-Helmut [AT/DE]; Solfstrasse 55, D-40593 Düsseldorf (DE). RIEBEL, Hans-Jochem [DE/DE]; In der Beek 92, D-42113 Wuppertal (DE). KÖNIG, Klaus [DE/DE]; Zum Hahnberg 40, D-51519 Odenthal (DE). SANTEL, Hans-Joachim [DE/DE]; Grünstrasse 91, D-51371 Leverkusen (DE). SCHMIDT, Robert, R. [DE/DE]; Im Waldwinkel 110, D-51467 Bergisch Gladbach (DE). | | (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE). (81) Bestimmungsstaaten: AU, BB, BG, BR, BY, CA, CZ, FI, HU, JP, KR, KZ, LK, NO, NZ, RO, RU, SK, UA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> |
| (54) Title: SULPHONYL AMINO CARBONYL TRIAZOLINONES (54) Bezeichnung: HERBIZIDE SULFONYLAMINOCARBONYTRIAZOLINONE <div style="text-align: center;"> $R^3-Q-SO_2-NH-CO-N \begin{array}{c} \diagup O \\ \diagdown \end{array} N-R^1 \quad (I)$ $\begin{array}{c} N \\ \diagup \end{array} = \begin{array}{c} I \\ \diagdown \end{array} R^2$ </div> <div style="display: flex; justify-content: center; gap: 50px;"> <div style="text-align: center;"> $\begin{array}{c} -N- \\ \\ R^4 \end{array} \quad (a)$ </div> <div style="text-align: center;"> $\begin{array}{c} -O-N- \\ \\ R^4 \end{array} \quad (b)$ </div> <div style="text-align: center;"> $\begin{array}{c} -NH-N- \\ \\ R^4 \end{array} \quad (c)$ </div> </div> (57) Abstract <p>The invention relates to novel sulphonyl amino carbonyl triazolinones of the formula (I) in which Q is oxygen, sulphur or one of the groupings (a), (b), (c) (where the residues R¹, R², R³ and R⁴ have the meaning given in the description), and salts of compounds of the formula (I), process and novel intermediate products for making the novel compounds and their use as herbicides.</p> (57) Zusammenfassung <p>Die Erfindung betrifft neue Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der Formel (I), in welcher Q für Sauerstoff, Schwefel oder eine der Gruppierungen (a), (b), (c) steht, (wobei die Reste R¹, R², R³ und R⁴ die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben), sowie Salze von Verbindungen der Formel (I), Verfahren und neue Zwischenprodukte zur Herstellung der neuen Verbindungen und deren Verwendung als Herbizide.</p> | | |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung..., die zu dieser Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT 95/01149

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| DE-A-4234801 | 21-04-94 | AU-B- 5110793 | 09-05-94 |
| | | WO-A- 9408979 | 28-04-94 |
| WO-A-9324482 | 09-12-93 | DE-A- 4217719 | 02-12-93 |
| | | AU-B- 4069093 | 30-12-93 |
| | | CA-A- 2136745 | 09-12-93 |
| | | EP-A- 0642506 | 15-03-95 |
| EP-A-422469 | 17-04-91 | DE-A- 3934081 | 18-04-91 |
| | | AU-B- 627080 | 13-08-92 |
| | | AU-A- 6459190 | 18-04-91 |
| | | CA-A- 2027206 | 13-04-91 |
| | | JP-A- 3133966 | 07-06-91 |
| | | PL-B- 165494 | 30-12-94 |
| | | US-A- 5405970 | 11-04-95 |
| | | US-A- 5380863 | 10-01-95 |
| | | US-A- 5057144 | 15-10-91 |
| | | US-A- 5085684 | 04-02-92 |
| | | US-A- 5094683 | 10-03-92 |
| | | US-A- 5149356 | 22-09-92 |
| | | US-A- 5241074 | 31-08-93 |
| | | US-A- 5276162 | 04-01-94 |

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C07D249/12 C07D249/14 A01N47/38 C07F9/6518 A01N57/32

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| P,X | DE,A,42 34 801 (BAYER AG) 21.April 1994 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument --- | 1-9 |
| Y | WO,A,93 24482 (BAYER AKTIENGESellschaft) 9.Dezember 1993 siehe das ganze Dokument, insbesondere Seite 19, Zeile 10, bis Seite 20, Zeile 19; Beispiele 33, 67, 68, 109-111, 113, 115-117 und 129-142 --- | 1-9 |
| Y | EP,A,0 422 469 (BAYER AG) 17.April 1991 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument, insbesondere Beispiele 7, 8, 11, 22, 29, 88-91 und 103-115 ----- | 1-9 |

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

& Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

27.Juni 1995

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

- 4. 07. 95

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Allard, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/95/01149

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|--|--|
| DE-A-4234801 | 21-04-94 | AU-B- 5110793 WO-A- 9408979 | 09-05-94 28-04-94 |
| WO-A-9324482 | 09-12-93 | DE-A- 4217719 AU-B- 4069093 CA-A- 2136745 EP-A- 0642506 | 02-12-93 30-12-93 09-12-93 15-03-95 |
| EP-A-422469 | 17-04-91 | DE-A- 3934081 AU-B- 627080 AU-A- 6459190 CA-A- 2027206 JP-A- 3133966 PL-B- 165494 US-A- 5405970 US-A- 5380863 US-A- 5057144 US-A- 5085684 US-A- 5094683 US-A- 5149356 US-A- 5241074 US-A- 5276162 | 18-04-91 13-08-92 18-04-91 13-04-91 07-06-91 30-12-94 11-04-95 10-01-95 15-10-91 04-02-92 10-03-92 22-09-92 31-08-93 04-01-94 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internat. Application No.

PCT/EP 95/01149

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C07D249/12 C07D249/14 A01N47/38 C07F9/6518 A01N57/32

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| P,X | DE,A,42 34 801 (BAYER AG) 21 April 1994 cited in the application see the whole document --- | 1-9 |
| Y | WO,A,93 24482 (BAYER AKTIENGESELLSCHAFT) 9 December 1993 see the whole document, in particular page 19, line 10, bis page 20, line 19; examples 33,67,68,109-111,113, 115-117 and 129-142 --- | 1-9 |
| Y | EP,A,0 422 469 (BAYER AG) 17 April 1991 cited in the application see the whole document, in particular examples 7,8,11,22,29,88-91 and 103-115 ----- | 1-9 |



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

T later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

X document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

Y document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

* & * document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

27 June 1995

Date of mailing of the international search report

- 4. 07. 95

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

Allard, M

in welcher

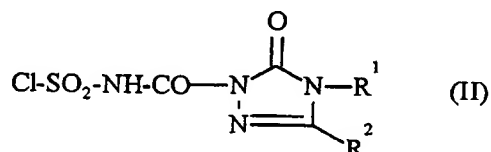
R^1 und R^2 die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,

mit Chlorsulfonylisocyanat, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt und die hierbei gebildeten Chlorsulfonylamino-carbonyltriazolinone der Formel (II) ohne Zwischenisolierung mit nucleophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III) gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

und gegebenenfalls die nach Verfahren (a) oder (b) erhaltenen Verbindungen der Formel (I) nach üblichen Methoden in Salze überführt.

6. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer Verbindung der Formel (I) gemäß Anspruch 1.
7. Verwendung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung von unerwünschtem Pflanzenwachstum.
- 15 8. Verfahren zur Bekämpfung von Unkräutern, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Unkräuter oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
9. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.

4. Die Natrium-, Kalium-, Magnesium-, Calcium-, Ammonium-, C₁-C₄-Alkyl-ammonium-, Di-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, Tri-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, C₅- oder C₆-Cycloalkyl-ammonium- und Di-(C₁-C₂-alkyl)-benzyl-ammonium-Salze der Verbindungen der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1, 2 und 3.
5. Verfahren zur Herstellung von substituierten Sulfonylaminocarbonyltriazolinonen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man
- (a) Chlorsulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (II)



in welcher

R¹ und R² die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,

10 mit nucleophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III)



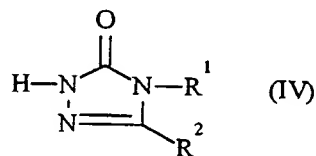
in welcher

Q und R³ die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,

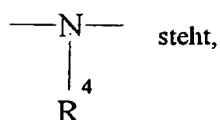
15 gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder daß man

- (b) Triazolinone der allgemeinen Formel (IV)



- 5 sulfanyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiert sind), durch Methylsulfonyloxy, Ethylsulfonyloxy, Methylaminosulfonyloxy, Ethylaminosulfonyloxy, Dimethylaminosulfonyloxy, Diethylaminosulfonyloxy, Trifluormethylsulfonyloxy, Dimethylaminocarbonyl oder Diethylaminocarbonyl, durch Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Chlor, Methyl oder Ethyl substituiert sind) durch Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylamino, Phenylcarbonyl, Phenylmethyl oder Phenylethyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiert sind), durch Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Cyclopropylcarbonyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl (welche gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Methoxy oder Ethoxy substituiert sind) substituiertes Phenyl, Phenylmethyl oder Phenylethyl steht,
- 10
- 15
- 20 R^4 für Wasserstoff, Cyano, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Difluormethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonyl-ethyl, Ethoxycarbonyl-ethyl, Allyl, Propargyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methoxy, Ethoxy, Allyloxy oder Benzyloxy steht oder für die Gruppierung Q^1-R^5 steht, worin
- 25 Q^1 für -CO- oder -SO₂- steht und
- 30 R^5 für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl oder Propyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Phenyl steht.



- 5 R^1 für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Dichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Trifluorethyl, Trichlorethyl, Chlordifluorethyl, Tetrafluorethyl, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, für Allyl, Chlorallyl, Dichlorallyl, Propargyl, für Cyclopropyl, Benzyl oder Phenyl, für Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für Allyloxy, n- oder i- oder s-Butoxy, für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, für Cyclopropylamino, Dimethylamino, Diethylamino oder Acetylamino steht,
- 10 R^2 für Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Cyclopropylmethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methylthiomethyl, Ethylthiomethyl, Methylthioethyl oder Ethylthioethyl, für Cyclopropyl, Difluorcyclopropyl oder Dichlorcyclopropyl, für Phenyl oder Benzyl, für Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Fluorethoxy, Difluorethoxy oder Trifluorethoxy, für Cyclopropylmethoxy, für Methoxymethoxy, Ethoxymethoxy, Methoxyethoxy oder Ethoxyethoxy, für Phenoxy oder Benzyloxy, für Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, für Fluorethylthio, Difluorethylthio oder Trifluorethylthio, Allylthio, Propargylthio, Cyclopropylmethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Phenylthio oder Benzylthio, für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Phenylamino oder Benzylamino, für Dimethylamino, Diethylamino, Dipropylamino, Methylethylamino, Methylpropylamino, für Aziridino oder für jeweils gegebenenfalls durch Methyl oder Ethyl substituiertes Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino steht,
- 20
- 25 R^3 für in 2- und in 6-Position (gleich oder verschieden) durch Fluor, Chlor, Brom, Formyl, Cyano, Carboxy, Nitro, durch Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethyl-

5 C₄-Alkyl substituiert sind), durch Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylamino, Phenylcarbonyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-amino substituiert sind), durch C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₃-C₆-Cycloalkylcarbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₁-C₄-Alkoxy substituiert sind) substituiertes Phenyl, Naphthyl, Phenyl-C₁-C₄-alkyl oder Naphthyl-C₁-C₄-alkyl steht, wobei
10 einer der Substituenten von Alkyl verschieden ist,

R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkinyl, für C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, für C₁-C₆-Alkoxy, C₃-C₆-Alkenyloxy, Benzyloxy, Phenoxy oder Di-(C₁-C₄-alkoxy)-(thio)phosphoryl steht oder für die nachstehende Gruppierung Q¹-R⁵ steht, worin
15

20 Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und

R⁵ für gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder für gegebenenfalls durch Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Phenyl steht.
25

3. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß darin

Q für Sauerstoff oder die Gruppierung

- 5 substituiertes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₆-Alkenyloxy, C₃-C₆-Alkinyloxy oder C₃-C₆-Cycloalkyloxy, für
10 jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenoxy oder Benzyloxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₃-C₆-Alkenylthio, C₃-C₆-Alkinylthio oder C₃-C₆-Cycloalkylthio, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano,
15 Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenylthio oder Benzylthio, für C₁-C₆-Alkylamino oder C₃-C₆-Alkenylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenylamino
20 oder Benzylamino, für Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, oder für jeweils gegebenenfalls durch C₁-C₄-Alkyl substituiertes Aziridino, Pyrrolidino oder Morpholino steht,
- 25 R³ für jeweils mindestens zweifach (gleich oder verschieden) durch Halogen, Formyl, Cyano, Carboxy, Nitro, durch C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiert sind), durch C₁-C₄-Alkylsulfonyloxy, C₁-C₄-Alkylaminosulfonyloxy, Di-(C₁-C₄-alkyl)aminosulfonyloxy, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyloxy, Di-(C₁-C₄-alkyl)aminocarbonyl oder C₁-C₄-Alkylaminocarbonyloxy, durch C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-
30

sowie Salze von Verbindungen der Formel (I).

2. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß darin

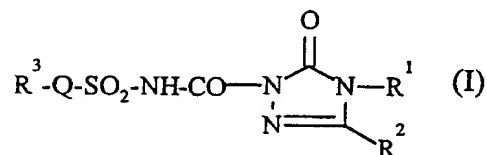
Q für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung $-N(R^4)-$ steht,

5 R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für C₂-C₁₀-Alkylidenamino, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkinyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für
10 gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Phenyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₆-Alkenyloxy, für gegebenenfalls durch Fluor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₄-Alkylamino, C₃-C₆-Cycloalkylamino oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino oder für C₁-C₆-Alkanoylamino steht,

25 R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Halogen, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom Cyano, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl oder C₂-C₆-Alkenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für Cyclohexenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl sub-
30

Patentansprüche

1. Substituierte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I),



in welcher

- Q für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung -N(R⁴)- steht ,
- 5 R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkylidenamino oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino, Alkanoylamino steht,
- 10 R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Halogen oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Cycloalkyl, Alkenyl, Cycloalkenyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Cycloalkyloxy, Aryloxy, Aralkyloxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkenylthio, Alkynylthio, Cycloalkylthio, Arylthio, Aralkylthio, Alkylamino, Alkenylamino, Arylamino, Aralkylamino, Dialkylamino, Aziridino, Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino steht,
- 15 R³ für jeweils mindestens zweifach substituiertes Aryl oder Arylalkyl steht, wobei einer der Substituenten von Alkyl verschieden ist,
- 20 R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, Alkoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Aralkoxy, Aryloxy oder Dialkoxy(thio)phosphoryl steht oder für die nachstehende Gruppierung Q¹-R⁵ steht, worin
- Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und
- R⁵ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl oder Aryl steht,

- 77 -

Tabelle B: Post-emergence-Test / Gewächshaus

| Wirkstoff Nr. | Aufwand- menge (kg/ha) | Weizen | Mais | Ama- ranthus | Galium | Ipo- moea | Poly- gonum | Sola- num |
|------------------|------------------------------|--------|------|-----------------|--------|--------------|----------------|--------------|
| 103 | 60 | 0 | 15 | 70 | 95 | 60 | 70 | 95 |
| 108 | 125 | 0 | 50 | 80 | 95 | 70 | 90 | 95 |
| 120 | 60 | 0 | 10 | 90 | 40 | 70 | 90 | 90 |
| 123 | 30 | 0 | 40 | 95 | 90 | 95 | 90 | 90 |
| 124 | 60 | 0 | 5 | 80 | 90 | 100 | 20 | 90 |
| 126 | 60 | 0 | 5 | 40 | 60 | 90 | 30 | 90 |
| 131 | 125 | 0 | 10 | 90 | 70 | 40 | 60 | 80 |
| 132 | 125 | 0 | 5 | 95 | 90 | 95 | 50 | 100 |
| 134 | 125 | 0 | 0 | 95 | 90 | 95 | 80 | 100 |
| 174 | 30 | 0 | 0 | 100 | 95 | 95 | 50 | 95 |
| 216 | 15 | 0 | 70 | 100 | 80 | 70 | 80 | 95 |
| 229 | 125 | 0 | 15 | 90 | 80 | 95 | 60 | 70 |

Beispiel B

Post-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 2000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

- 15 Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)
100 % = totale Vernichtung

Die getesteten Wirkstoffe, ihre Aufwandmengen, die Testpflanzen und die erhaltenen Testergebnisse gehen aus der nachfolgenden Tabelle B hervor.

- 20 In Tabelle B beziehen sich die Nummern der Wirkstoffe auf die obigen Herstellungsbeispiele.

- 75 -

Tabelle A: Pre-emergence-Test / Gewächshaus

| Wirkstoff Nr. | Aufwand- menge (kg/ha) | Weizen | Mais | Galium | Galinsoga | Portulaca | Sinapis | Solanum |
|------------------|------------------------------|--------|------|--------|-----------|-----------|---------|---------|
| 1 | 125 | 0 | 80 | 100 | 100 | 95 | 95 | 95 |
| 23 | 30 | 0 | 0 | 95 | 95 | 95 | 95 | 90 |
| 24 | 60 | 0 | 40 | 95 | 95 | 95 | 95 | 95 |
| 36 | 125 | 0 | 50 | 70 | 100 | 95 | 90 | 90 |
| 103 | 125 | 0 | 0 | 95 | 100 | 70 | 90 | 95 |
| 108 | 125 | 0 | 0 | 95 | 95 | 80 | 80 | 95 |
| 111 | 250 | 0 | 0 | 95 | 95 | 95 | 95 | 95 |
| 114 | 125 | 0 | 10 | 95 | 95 | 90 | 95 | 95 |
| 118 | 125 | 0 | 0 | 95 | 95 | 80 | 90 | 95 |
| 132 | 125 | 0 | 0 | 90 | 95 | 60 | 95 | 95 |
| 134 | 125 | 0 | 0 | 95 | 95 | 80 | 95 | 95 |
| 135 | 60 | 20 | 0 | 80 | 95 | 70 | 80 | 60 |
| 138 | 250 | 0 | 40 | 95 | 95 | 95 | 80 | 95 |
| 141 | 125 | 0 | 0 | 80 | 70 | 90 | 80 | 90 |
| 143 | 125 | 20 | 0 | 70 | 95 | 90 | 70 | 90 |
| 148 | 30 | 0 | 30 | 80 | 95 | 95 | 90 | 95 |
| 174 | 125 | 0 | 10 | 70 | 90 | 80 | 90 | 90 |
| 204 | 125 | 30 | 0 | 95 | 95 | 95 | 95 | 95 |
| 206 | 125 | 0 | 0 | 90 | 100 | 95 | 95 | 95 |
| 216 | 30 | 0 | 60 | 90 | 95 | 50 | 90 | 90 |

Anwendungsbeispiele:Beispiel A

Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

- 5 Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

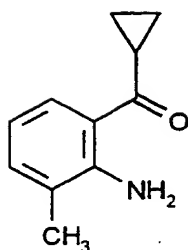
Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät. Nach 24 Stunden wird der Boden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffs pro Flächeneinheit. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen
- 15 bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle. Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)
100 % = totale Vernichtung

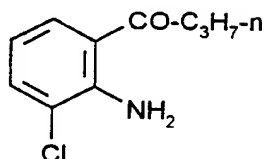
- Die getesteten Wirkstoffe, ihre Aufwandmengen, die Testpflanzen und die erhaltenen
- 20 Testergebnisse gehen aus der nachfolgenden Tabelle A hervor.

In Tabelle A beziehen sich die Nummern der Wirkstoffe auf die oben beschriebenen Herstellungsbeispiele (vgl. Beispiel 1 sowie Tabelle 1).

Beispiel (III-2)

250 ml Dichlorethan werden bei 0°C bis +5°C mit 30 g (0,25 Mol) Bor(III)-chlorid
5 versetzt und zu dieser Mischung werden bei 0°C bis +5°C 26,8 g (0,25 Mol) 2-Methyl-anilin tropfenweise gegeben. Dann werden 25 g (0,375 Mol) Cyclopropylcyanid bei 0°C bis +5°C zuge tropft und anschließend 36 g (0,275 Mol) Aluminium(III)-chlorid portionsweise einge dosiert. Die Reaktionsmischung wird dann ca. 15 Stunden unter Rückfluß erhitzt, anschließend abkühlen gelassen und auf ca. 1 Liter Eiswasser ge-
10 gossen. Es wird bis zur Auflösung der festen Komponenten gerührt, die organische Phase abgetrennt, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeengt, der Rückstand durch Digerieren mit Ligroin zur Kristallisation gebracht und das Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 58 g (66% der Theorie) 2-Cyclopropylcarbonyl-6-methyl-anilin vom
15 Schmelzpunkt 64°C.

Ausgangsstoffe der Formel (III):Beispiel (III-1)

- 5 Zu einer Lösung von 33,8 g (0,29 Mol) Bor(III)-chlorid in 200 ml Dichlorethan gibt man unter Eiskühlung 32,0 g (0,25 Mol) 2-Chlor-anilin. Dann werden nacheinander 22,0 g (0,32 Mol) Butyronitril und 38 g (0,28 Mol) Aluminiumchlorid bei 0°C dazu gegeben. Die Mischung wird 15 Stunden unter Rückfluß erhitzt, nach Erkalten auf Eiswasser gegossen, die organische Phase abgetrennt, mit Natriumsulfat getrocknet und destilliert.
- 10

Man erhält 12 g (24% der Theorie) 2-Chlor-6-propylcarbonyl-anilin vom Siedepunkt 105°C (2 mbar).

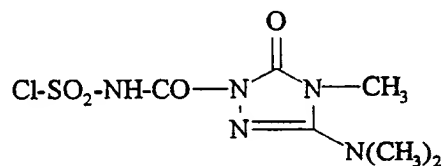
- 71 -

-10°C gerührt, wobei zunächst eine klare Lösung entsteht und dann das Produkt sich kristallin abscheidet. Es wird durch Absaugen isoliert.

Man erhält 45 g (88% der Theorie) 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-4,5-dimethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 150°C (unter Zersetzung).

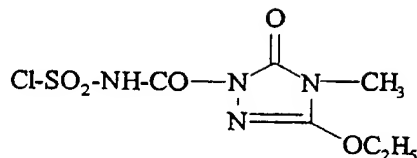
5

Beispiel (II-3)

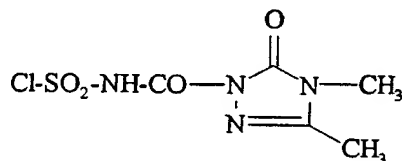


10 g (72 mMol) 5-Dimethylamino-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 250 ml Methylenchlorid bei -10°C bis 0°C langsam mit 9,9 g (72 mMol) Chlorsulfonylisocyanat versetzt. Nach dreißigminütigem Rühren hat die Reaktionsmischung Raumtemperatur (20°C) erreicht. Das Lösungsmittel wird dann durch Destillation im Wasserstrahlvakuum entfernt.

Man erhält 19,1 g (94% der Theorie) 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-5-dimethylamino-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als amorphen Rückstand.

Ausgangsstoffe der Formel (II):Beispiel (II-1)

- 5 28,8 g (0,20 Mol) 5-Ethoxy-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 250 ml Methylenchlorid vorgelegt und auf -10°C abgekühlt. Zu dieser Mischung werden 28,3 g (0,20 Mol) Chlorsulfonylisocyanat gegeben und das Reaktionsgemisch wird ohne Kühlen 30 Minuten gerührt. Dann wird das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum sorgfältig abdestilliert.
- 10 Man erhält 53 g (93% der Theorie) 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-5-ethoxy-4-methyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on als kristallinen Rückstand vom Schmelzpunkt 106°C.

Beispiel (II-2)

15

22,6 g (0,20 Mol) 4,5-Dimethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 250 ml Methylenchlorid vorgelegt und auf -10°C abgekühlt. Dann werden 28,3 g (0,20 Mol) Chlorsulfonylisocyanat dazu gegeben und die Mischung wird 20 Minuten bei -5°C bis

Tabelle 1 - Fortsetzung

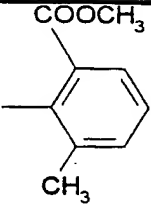
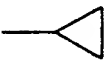
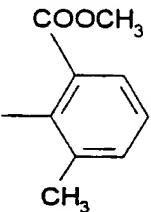
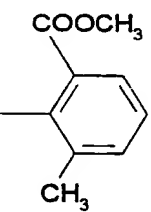
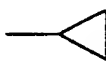
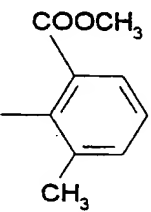
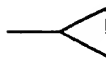
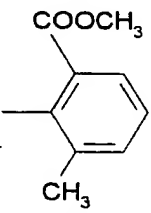
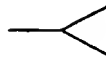
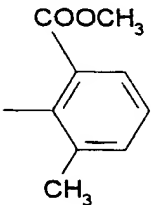
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|---|---|-----------------|
| 240 | NH | CH ₃ | C ₃ H ₇ -n |  | Fp.: 137°C |
| 241 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 151°C |
| 242 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 148°C |
| 243 | NH |  | OCH ₃ |  | Fp.: 140°C |
| 244 | NH |  | OC ₃ H ₇ -n |  | Fp.: 134°C |
| 245 | NH |  | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 142°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

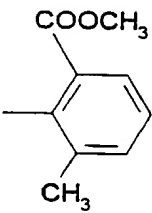

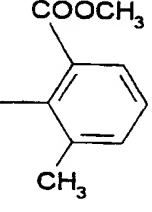
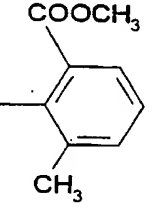
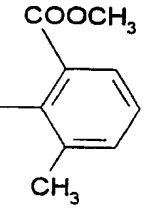
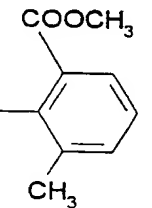
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|--|---|-----------------|
| 235 | NH | CH ₃ | OC ₄ H ₉ -s |  | Fp.: 121°C |
| 236 | NH | CH ₃ | OCH ₂ -  |  | Fp.: 130°C |
| 237 | NH | CH ₃ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 136°C |
| 238 | NH | CH ₃ | SCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 139°C |
| 239 | NH | CH ₃ | SCH ₂ CH ₂ F |  | Fp.: 141°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

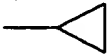
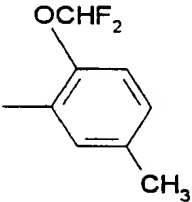
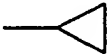
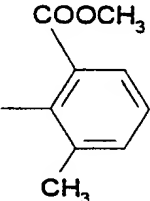
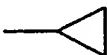
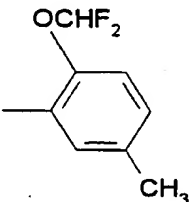
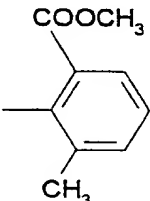
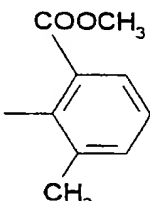
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|----------------------------------|---|-----------------|
| 230 | NH |  | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 110°C |
| 231 | NH |  | Br |  | Fp.: 108°C |
| 232 | NH |  | Br |  | Fp.: 144°C |
| 233 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 139°C |
| 234 | NH | CH ₃ | OC ₃ H _{7-n} |  | Fp.: 124°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

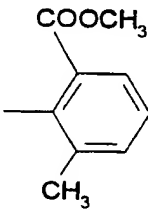
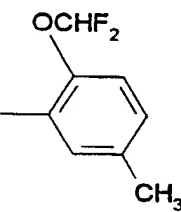
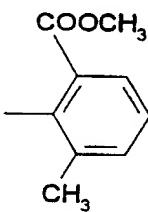
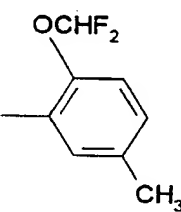
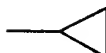
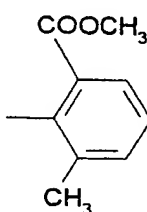
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|--------------------------------|---|-----------------|
| 225 | NH | CH ₃ | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 149°C |
| 226 | NH | CH ₃ | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 114°C |
| 227 | NH | CH ₃ | Br |  | Fp.: 143°C |
| 228 | NH | CH ₃ | Br |  | Fp.: 135°C |
| 229 | NH |  | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 124°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

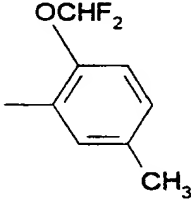
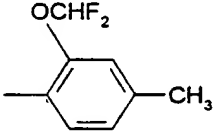
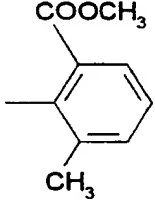
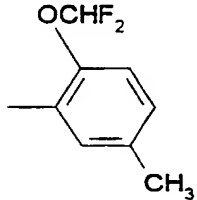
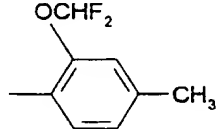
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|--------------------------------|---|-----------------|
| 220 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 145°C |
| 221 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 156°C |
| 222 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 100°C |
| 223 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 138°C |
| 224 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 137°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

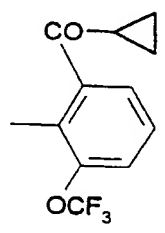
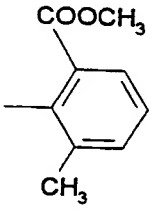
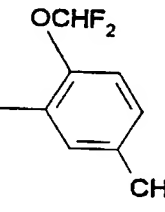
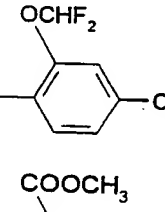
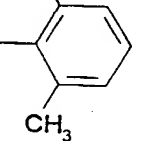
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|--------------------------------|---|-----------------|
| 215 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 142°C |
| 216 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 168°C |
| 217 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 149°C |
| 218 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 130°C |
| 219 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 151°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

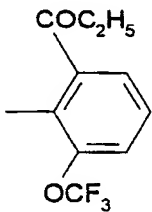
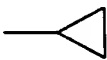
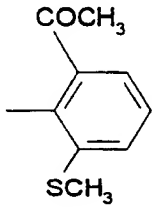
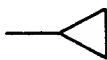
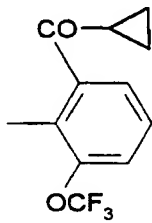
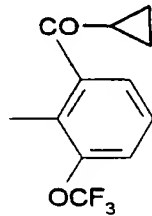
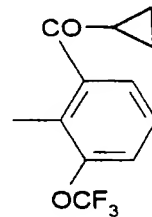
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|--------------------------------|---|-----------------|
| 210 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 147°C |
| 211 | NH |  | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 95°C |
| 212 | NH |  | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 127°C |
| 213 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 127°C |
| 214 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 130°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

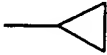
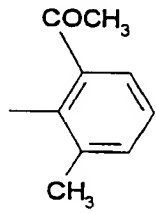
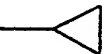
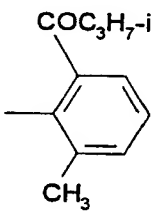
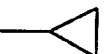
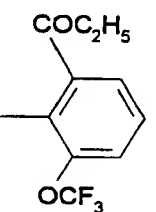
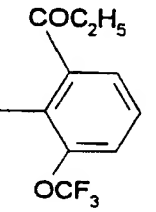
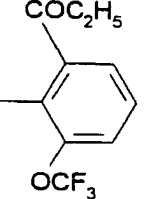
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|--------------------------------|---|-----------------|
| 205 | NH |  | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 132°C |
| 206 | NH |  | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 88°C |
| 207 | NH |  | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 135°C |
| 208 | NH | CH ₃ | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 116°C |
| 209 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 134°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

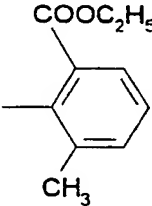
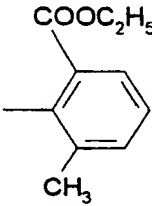
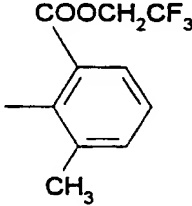
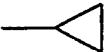
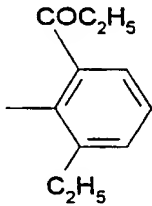
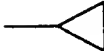
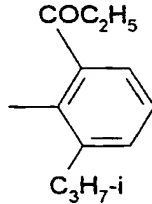
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|--------------------------------|---|-----------------|
| 200 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | |
| 201 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | |
| 202 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | |
| 203 | NH |  | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 92°C |
| 204 | NH |  | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 108°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

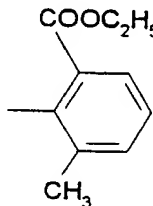
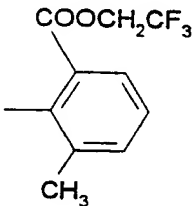
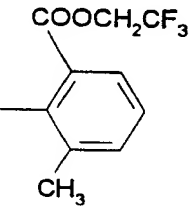
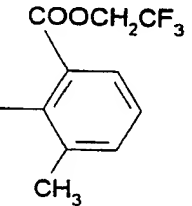
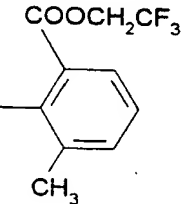
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|-----------------------------------|---|-----------------|
| 195 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | |
| 196 | NH | CH ₃ | C ₂ H ₅ |  | |
| 197 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -n |  | |
| 198 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | |
| 199 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

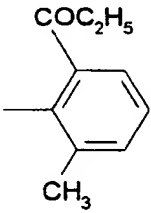
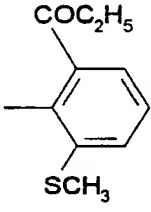
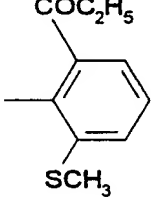
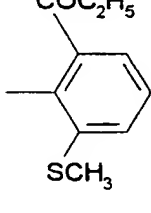
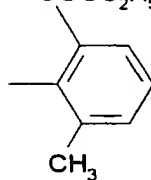
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|----------------------------------|----------------------------------|---|-----------------|
| 190 | NH | N(CH ₃) ₂ | CH ₃ |  | Fp.: 98°C |
| 191 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 131°C |
| 192 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 118°C |
| 193 | NH | CH ₃ | OC ₃ H _{7-i} |  | Fp.: 115°C |
| 194 | NH | CH ₃ | OC ₃ H _{7-n} |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

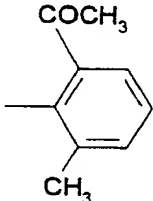
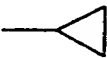
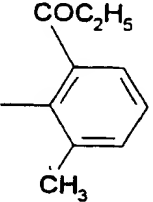
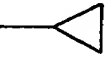
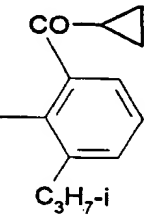
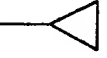
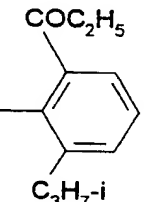
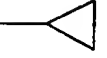
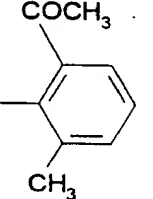
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|----------------------------------|---|-----------------|
| 185 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 125°C |
| 186 | NH |  | OC ₃ H _{7-n} |  | Fp.: 76°C |
| 187 | NH |  | OC ₃ H _{7-n} |  | Fp.: 113°C |
| 188 | NH |  | OC ₃ H _{7-n} |  | Fp.: 115°C |
| 189 | NH |  | OC ₃ H _{7-n} |  | Fp.: 123°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

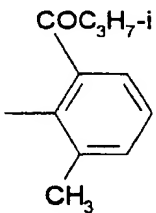
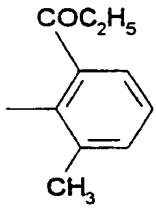
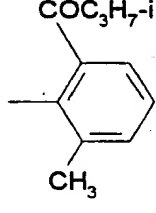
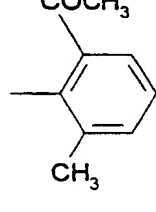
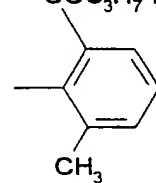
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-------------------------------|-----------------------------------|---|-----------------|
| 180 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 129°C |
| 181 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -n |  | Fp.: 118°C |
| 182 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -n |  | Fp.: 98°C |
| 183 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -n |  | Fp.: 123°C |
| 184 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 125°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

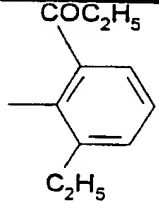
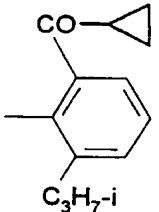
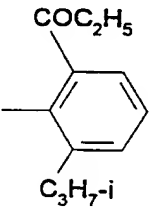
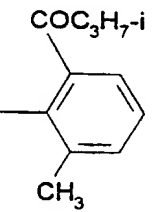
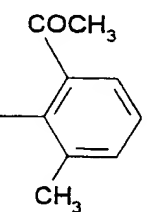
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|-----------------------------------|---|-----------------|
| 175 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -n |  | Fp.: 116°C |
| 176 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -n |  | Fp.: 137°C |
| 177 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -n |  | Fp.: 129°C |
| 178 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 128°C |
| 179 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 128°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

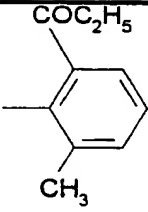
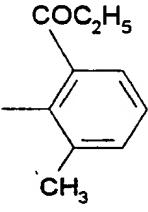
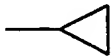
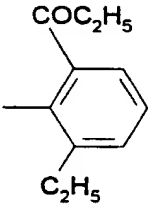
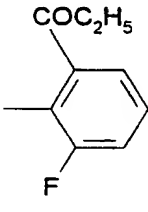
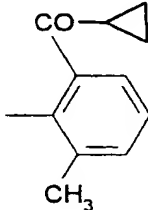
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|---|---|---|
| 170 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 187°C |
| 171 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | (Sirup, <u>Tri-ethylammo- niumsalz</u> von Nr. 170) |
| 172 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 124°C |
| 173 | NH | CH ₃ | OC ₃ H _{7-n} |  | Fp.: 132°C |
| 174 | NH | CH ₃ | OC ₃ H _{7-n} |  | Fp.: 123°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

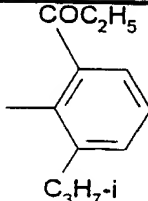
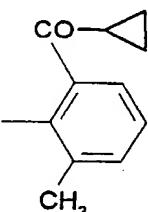
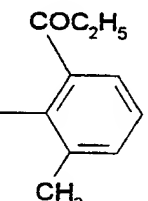
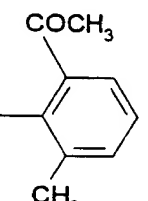
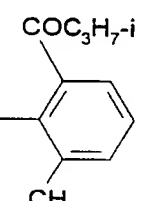
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|--------------------------------------|----------------------------------|---|-------------------|
| 165 | NH | -CH ₂ -CH=CH ₂ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 133°C (Z) |
| 166 | NH | -CH ₂ -CH=CH ₂ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 116°C |
| 167 | NH | -CH ₂ -CH=CH ₂ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 96°C (Z) |
| 168 | NH | -CH ₂ -CH=CH ₂ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 119°C |
| 169 | NH | -CH ₂ -CH=CH ₂ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 99°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

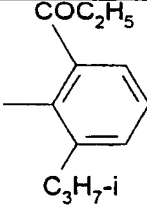
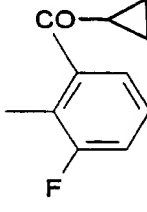
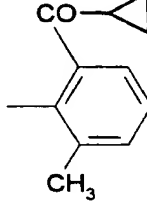
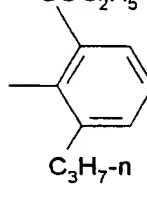
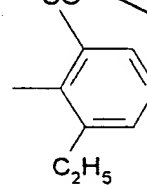
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|--------------------------------------|----------------------------------|--|-----------------|
| 160 | NH | CH ₃ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 85°C |
| 161 | NH | CH ₃ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 89°C |
| 162 | NH | CH ₃ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 127°C |
| 163 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 117°C |
| 164 | NH | -CH ₂ -CH=CH ₂ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 104°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

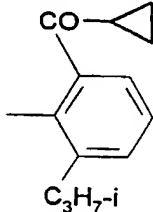
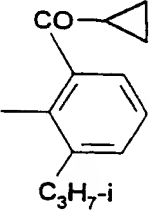
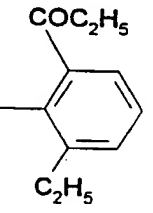
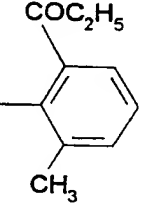
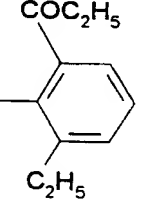
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|----------------------------------|---|-------------------|
| 155 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 130 C |
| 156 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 145 C (Z) |
| 157 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 131 C (Z) |
| 158 | NH | CH ₃ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 134 C (Z) |
| 159 | NH | CH ₃ | OCH ₂ CF ₃ |  | Fp.: 124 C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

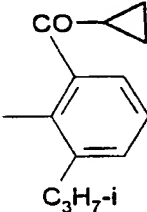
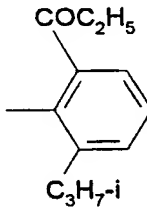
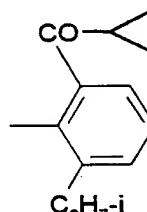
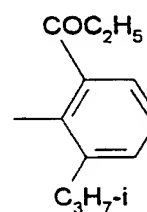
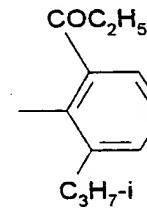
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-------------------------------|--------------------------------|---|-----------------|
| 150 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 133 C |
| 151 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 123 C |
| 152 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 159 C |
| 153 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 156 C |
| 154 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 121 C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

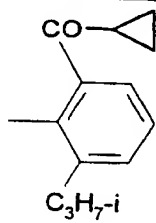
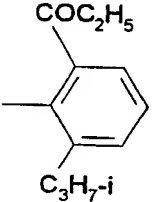
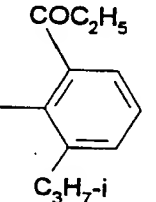
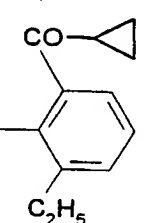
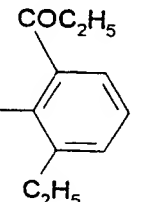
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|-----------------------------------|---|-----------------|
| 145 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 139°C |
| 146 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 146°C |
| 147 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 131°C |
| 148 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 98°C |
| 149 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 147°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

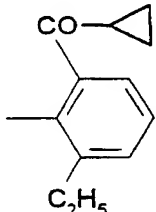
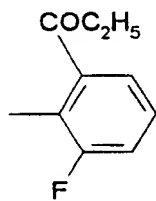
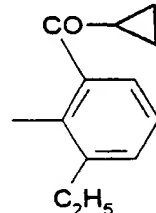
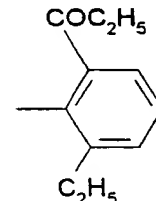
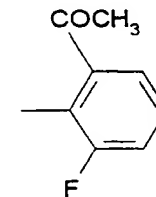
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-------------------------------|-----------------------------------|---|-----------------|
| 140 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 136°C |
| 141 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 122°C |
| 142 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 131°C |
| 143 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 107°C |
| 144 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 137°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

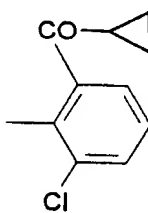
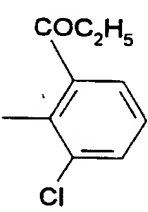
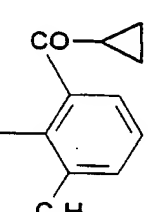
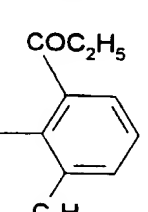
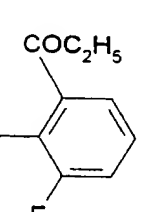
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|----------------------------------|---|-------------------|
| 135 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 129°C (Z) |
| 136 | NH | CH ₃ | OC ₃ H _{7-i} |  | Fp.: 122°C |
| 137 | NH | CH ₃ | OC ₃ H _{7-i} |  | Fp.: 119°C |
| 138 | NH | CH ₃ | OC ₃ H _{7-i} |  | Fp.: 148°C |
| 139 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 112°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

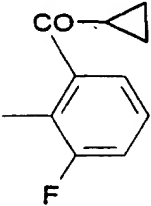
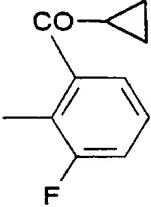
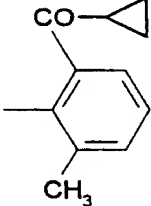
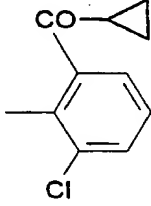
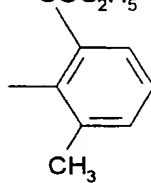
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|-----------------------------------|---|-----------------|
| 130 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 161°C |
| 131 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 135°C |
| 132 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 164°C |
| 133 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 138°C |
| 134 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 156°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

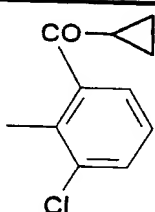
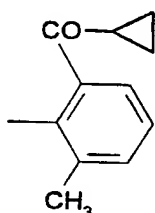
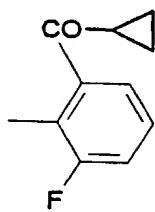
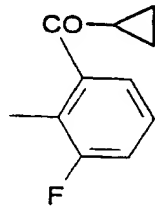
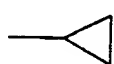
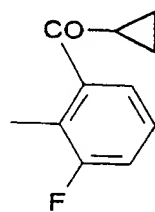
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|---|---|-----------------|
| 125 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 141°C |
| 126 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 145°C |
| 127 | NH | CH ₃ | C ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 112°C |
| 128 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 139°C |
| 129 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 145°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

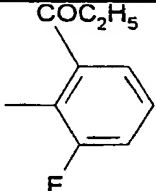
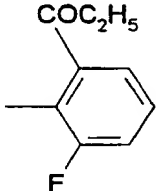
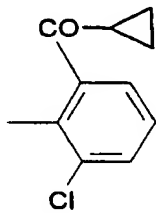
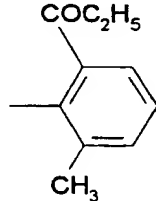
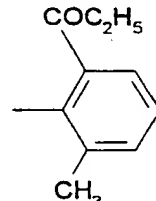
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|--------------------------------|---|-----------------|
| 120 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 146°C |
| 121 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 101°C |
| 122 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 113°C |
| 123 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 129°C |
| 124 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 131°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

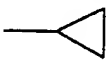
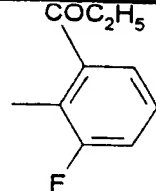
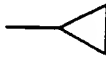
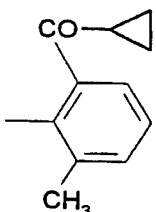
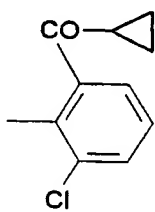
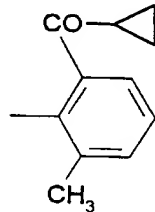
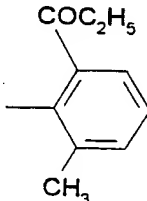
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|---|---|-----------------|
| 115 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 158°C |
| 116 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 101°C |
| 117 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 161°C |
| 118 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 166°C |
| 119 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 151°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

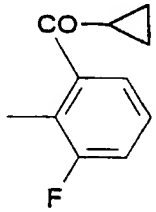
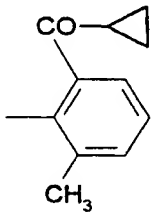
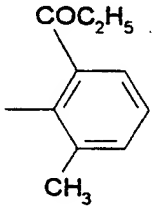
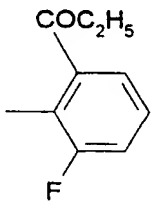
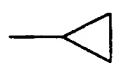
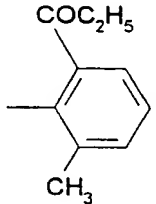
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|---|---|-------------------|
| 110 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 142°C (Z) |
| 111 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 117°C (Z) |
| 112 | NH | CH ₃ | C ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 104°C |
| 113 | NH | CH ₃ | C ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 128°C |
| 114 | NH | CH ₃ |  |  | Fp.: 141°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

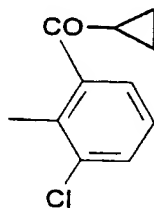
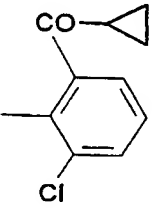
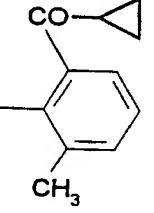
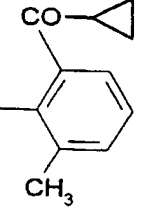
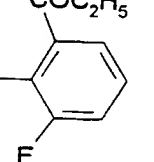
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-------------------------------|----------------------------------|---|-------------------|
| 105 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 129°C (Z) |
| 106 | NH | CH ₃ | C ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 134°C (Z) |
| 107 | NH | CH ₃ | C ₃ H ₇ -i |  | Fp.: 114°C (Z) |
| 108 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 127°C |
| 109 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 142°C (Z) |

Tabelle 1 - Fortsetzung

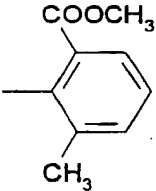
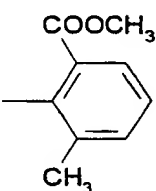
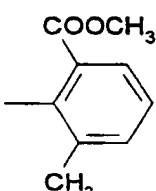
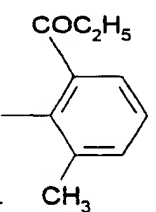
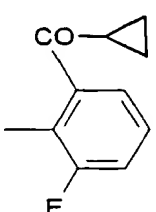
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-------------------------------|--------------------------------|---|-------------------|
| 100 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | |
| 101 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 102 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ |  | |
| 103 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 131°C (Z) |
| 104 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | Fp.: 137°C (Z) |

Tabelle 1 - Fortsetzung

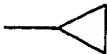
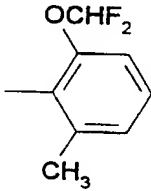
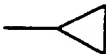
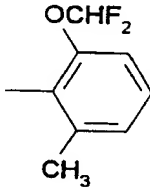
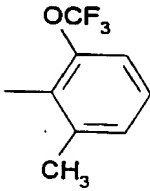
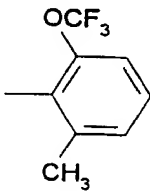
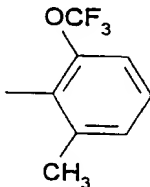
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|--------------------------------|---|-----------------|
| 95 | NH |  | OC ₂ H ₅ |  | |
| 96 | NH |  | OC ₃ H ₇ |  | |
| 97 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | |
| 98 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 99 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

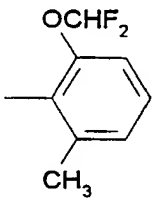
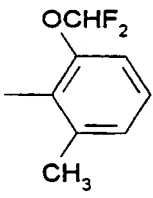
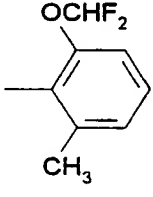
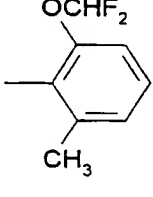
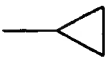
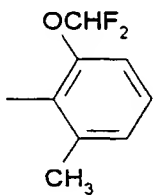
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|----------------------------------|---|-----------------|
| 90 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | |
| 91 | NH | C ₂ H ₅ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 92 | NH | C ₂ H ₅ | OC ₃ H ₇ |  | |
| 93 | NH | C ₂ H ₅ | OCH ₂ CF ₃ |  | |
| 94 | NH |  | OCH ₃ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

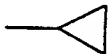
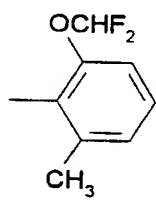
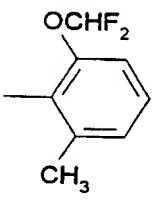
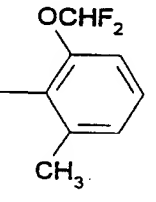
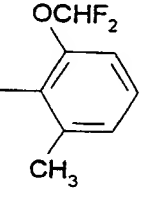
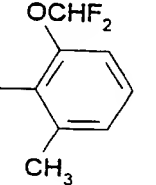
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|----------------------------------|---|-----------------|
| 85 | NH |  | Br |  | Fp.: 150°C |
| 86 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 148°C |
| 87 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 88 | NH | CH ₃ | OC ₃ H ₇ |  | |
| 89 | NH | CH ₃ | OCH ₂ CF ₃ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

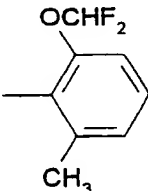
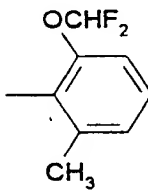
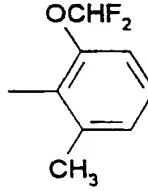
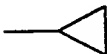
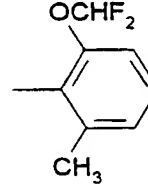
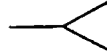
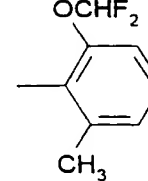
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|----------------------------------|---|-----------------|
| 80 | NH | CH ₃ | Cl |  | |
| 81 | NH | CH ₃ | Br |  | Fp.: 164°C |
| 82 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | |
| 83 | NH |  | N(CH ₃) ₂ |  | |
| 84 | NH |  | Cl |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

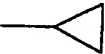
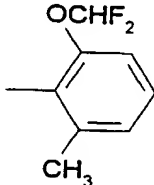
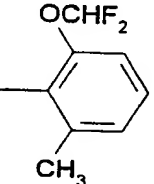
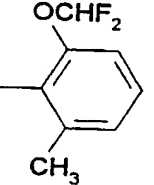
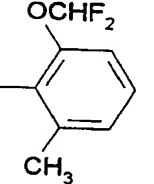
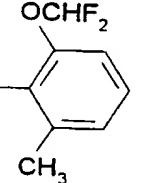
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|----------------------------------|---|---|-----------------|
| 75 | NH | OC ₂ H ₅ |  |  | |
| 76 | NH | N(CH ₃) ₂ | OCH ₃ |  | |
| 77 | NH | N(CH ₃) ₂ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 78 | NH | N(CH ₃) ₂ | OC ₃ H ₇ |  | |
| 79 | NH | N(CH ₃) ₂ | OCH ₂ CF ₃ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

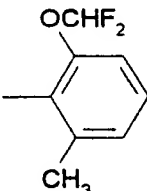
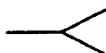
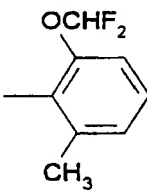
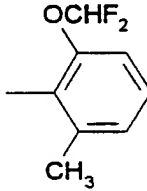
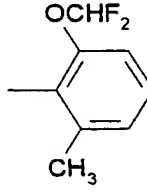
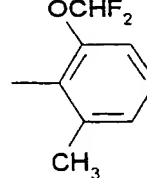
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|--------------------------------|---|---|-----------------|
| 70 | NH | OCH ₃ | C ₃ H ₇ |  | |
| 71 | NH | OCH ₃ |  |  | |
| 72 | NH | OC ₂ H ₅ | CH ₃ |  | |
| 73 | NH | OC ₂ H ₅ | C ₂ H ₅ |  | |
| 74 | NH | OC ₂ H ₅ | C ₃ H ₇ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

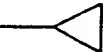
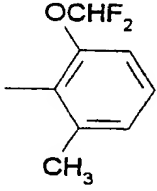
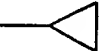
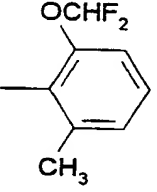
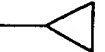
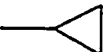
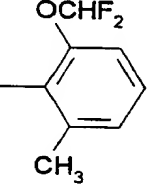
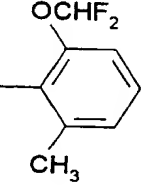
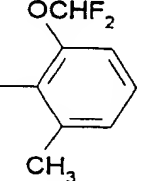
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|---|---|-----------------|
| 65 | NH |  | C ₃ H ₇ |  | |
| 66 | NH |  | C ₄ H ₉ |  | |
| 67 | NH |  |  |  | |
| 68 | NH | OCH ₃ | CH ₃ |  | |
| 69 | NH | OCH ₃ | C ₂ H ₅ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

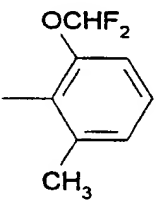
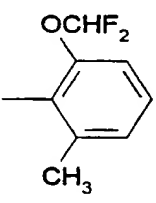
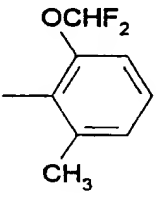
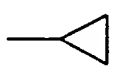
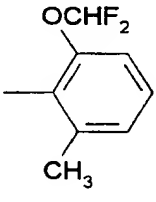
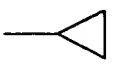
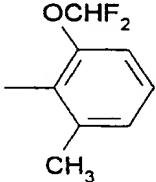
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|---|---|-----------------|
| 60 | NH | CH ₃ | C ₂ H ₅ |  | Fp.: 108°C |
| 61 | NH | CH ₃ | C ₃ H ₇ |  | |
| 62 | NH | CH ₃ | C ₄ H ₉ |  | |
| 63 | NH | CH ₃ |  |  | |
| 64 | NH |  | C ₂ H ₅ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

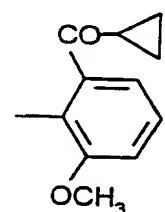
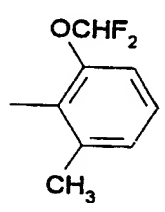
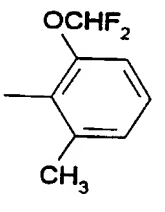
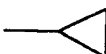
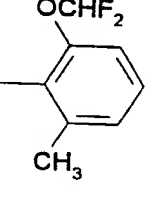
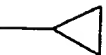
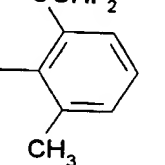
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|------------------|---|--------------------------------|---|-----------------|
| 55 | NCH ₃ | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 56 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | Fp.: 143°C |
| 57 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 129°C |
| 58 | NH |  | SCH ₃ |  | |
| 59 | NH |  | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 161°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

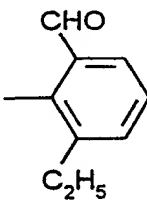
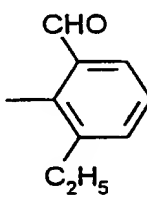
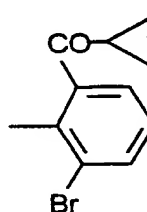
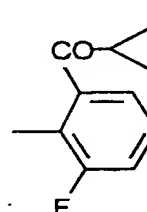
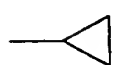
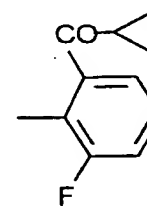
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|--------------------------------|---|-----------------|
| 50 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | |
| 51 | S | OCH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 52 | NH | OCH ₃ | OCH ₃ |  | |
| 53 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 54 | NH |  | CH ₃ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

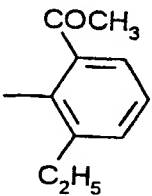
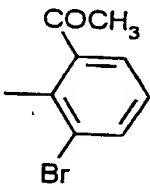
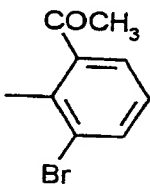
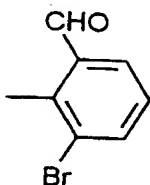
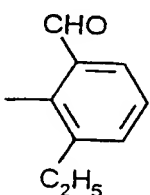
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|------------------|--------------------------------|--------------------------------|---|-----------------|
| 45 | NH | OC ₂ H ₅ | CH ₃ |  | |
| 46 | O | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 47 | NCH ₃ | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 48 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 49 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

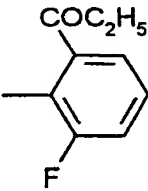
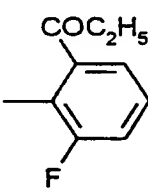

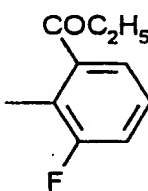
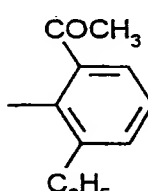
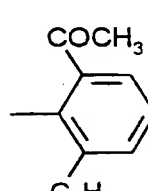
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|--------------------------------|---|-------------------|
| 40 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 136°C (Z) |
| 41 | NH | OCH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 42 | NH |  | OCH ₃ |  | |
| 43 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | |
| 44 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

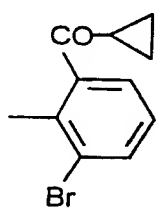
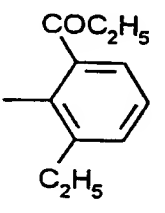
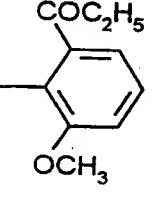
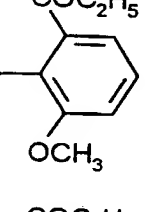
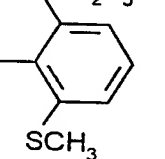
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|--------------------------------|---|-----------------|
| 35 | NH | CH ₃ | CH ₃ |  | Fp.: 142°C |
| 36 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | |
| 37 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | |
| 38 | O | CH ₃ | OCH ₃ |  | |
| 39 | O | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

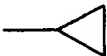
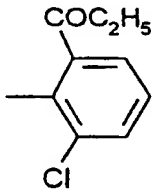
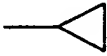
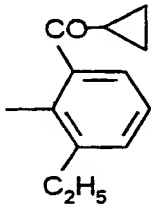
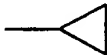
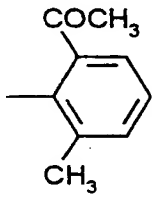
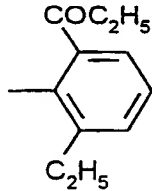
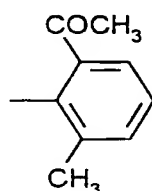
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|---|--------------------------------|---|-----------------|
| 30 | NH |  | CH ₃ |  | |
| 31 | NH |  | OCH ₃ |  | |
| 32 | NH |  | OC ₂ H ₅ |  | |
| 33 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 147°C |
| 34 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

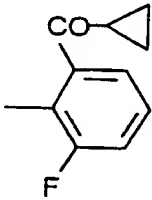
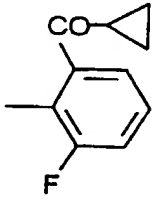
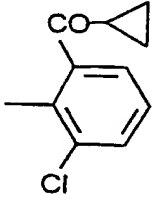
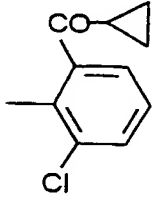
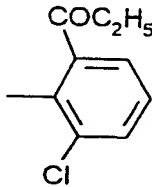
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|------------------|------------------|--------------------------------|---|-------------------|
| 25 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 145°C (Z) |
| 26 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | Fp.: 107°C |
| 27 | NCH ₃ | OCH ₃ | C ₂ H ₅ |  | |
| 28 | O | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 29 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 129°C (Z) |

Tabelle 1 - Fortsetzung

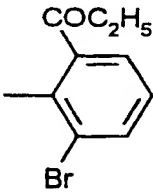
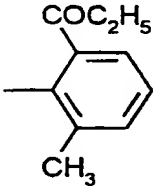
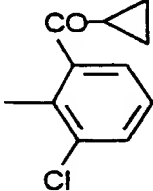
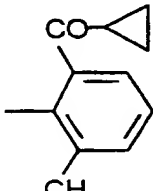
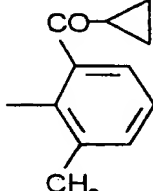
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|--------------------------------|-------------------------------|----------------------------------|---|-------------------|
| 20 | S | C ₂ H ₅ | OCH ₃ |  | |
| 21 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | Fp.: 117°C(Z) |
| 22 | NC ₂ H ₅ | CH ₃ | CH ₃ |  | |
| 23 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | Fp.: 154°C (Z) |
| 24 | NH | CH ₃ | OCH ₃ |  | Fp.: 138°C |

Tabelle 1 - Fortsetzung

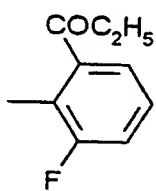
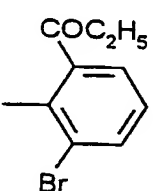
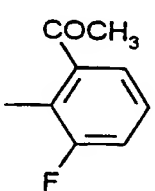
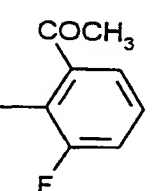
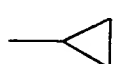
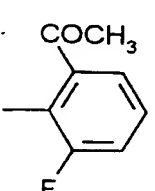
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|------------------|------------------|---|---|-----------------|
| 15 | NCH ₃ | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 16 | NH | OCH ₃ | CH ₃ |  | |
| 17 | O | CH ₃ | OCH ₃ |  | |
| 18 | NH | CH ₃ | SC ₂ H ₅ |  | |
| 19 | NH | CH ₃ |  |  | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

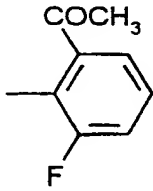
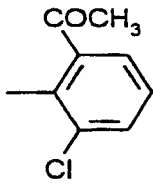
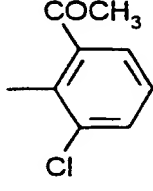
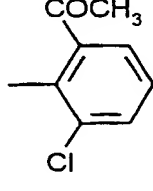
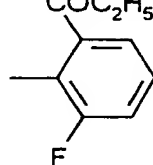
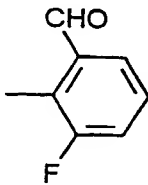
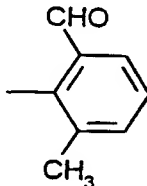
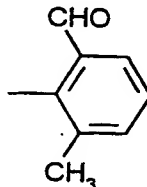
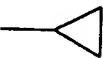
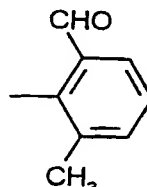
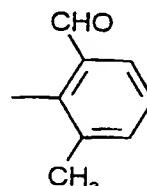
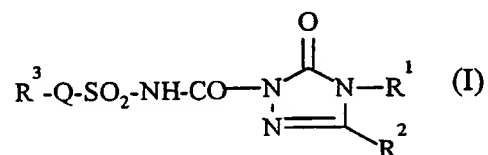
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-------------------------------|----------------------------------|---|-----------------|
| 10 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₂ |  | |
| 11 | NH | C ₂ H ₅ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 12 | NH | CH ₃ | Cl |  | |
| 13 | NH | OCH ₃ | CH ₃ |  | |
| 14 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |

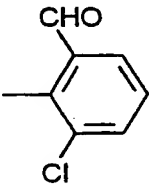
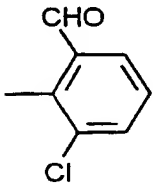
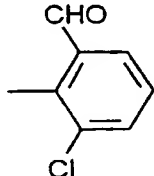
Tabelle 1 - Fortsetzung

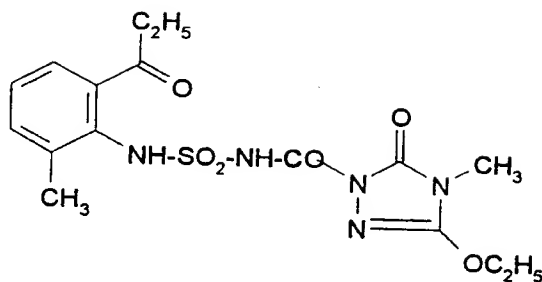
| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-------------------------------|---|---|-----------------|
| 5 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |
| 6 | NH | C ₂ H ₅ | CH ₃ |  | |
| 7 | NH | OCH ₃ | nC ₃ H ₇ |  | |
| 8 | NH | CH ₃ |  |  | |
| 9 | NH | CH ₃ | SCH ₃ |  | |

Analog Beispiel 1 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt werden.



5 **Tabelle 1:** Herstellungsbeispiele für die Verbindungen der Formel (I)
("Z" steht in Tabelle 1 für "Zersetzung beim Schmelzen")

| Bsp.-Nr. | Q | R ¹ | R ² | R ³ | physikal. Daten |
|----------|----|-----------------|----------------------------------|---|-----------------|
| 2 | NH | CH ₃ | CH ₃ |  | |
| 3 | NH | CH ₃ | N(CH ₃) ₃ |  | |
| 4 | NH | CH ₃ | OC ₂ H ₅ |  | |

Herstellungsbeispiele:Beispiel 1

5 (Verfahren (a))

2,85 g (0,01 Mol) 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-4-methyl-5-ethoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 150 ml Methylenchlorid vorgelegt und zu dieser Mischung werden bei 20°C 3,26 g (0,02 Mol) 2-Amino-3-methyl-propiophenon gegeben. Das Reaktionsgemisch wird 2 Stunden bei 20°C gerührt. Dann wird es dreimal mit je 50 ml Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt und der Rückstand aus Ethanol umkristallisiert.

Man erhält 3,58 g (87% der Theorie) 2-(2-Methyl-6-propionyl-phenylamino-sulfonylaminocarbonyl)-4-methyl-5-ethoxy-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 134°C.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 2 kg pro ha.

- 5 Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

- propham, Desmedipham, Phenmedipham und Propham; Chloracetanilide, wie z.B. Alachlor, Acetochlor, Butachlor, Metazachlor, Metolachlor, Pretilachlor und Propachlor; Dinitroaniline, wie z.B. Oryzalin, Pendimethalin und Trifluralin; Diphenylether, wie z.B. Acifluorfen, Bifenox, Fluoroglycofen, Fomesafen, Halosafen, Lactofen und
- 5 Oxyfluorfen; Harnstoffe, wie z.B. Chlortoluron, Diuron, Fluometuron, Isoproturon, Linuron und Methabenzthiazuron; Hydroxylamine, wie z.B. Alloxydim, Clethodim, Cycloxydim, Sethoxydim und Tralkoxydim; Imidazolinone, wie z.B. Imazethapyr, Imazamethabenz, Imazapyr und Imazaquin; Nitrile, wie z.B. Bromoxynil, Dichlobenil und Ioxynil; Oxyacetamide, wie z.B. Mefenacet; Sulfonylharnstoffe, wie z.B. Amido-
- 10 sulfuron, Bensulfuron-methyl, Chlorimuron-ethyl, Chlorsulfuron, Cinosulfuron, Metsulfuron-methyl, Nicosulfuron, Primisulfuron, Pyrazosulfuron-ethyl, Thifensulfuron-methyl, Triasulfuron und Tribenuron-methyl; Thiocarbamate, wie z.B. Butylate, Cycloate, Diallate, EPTC, Esprocarb, Molinate, Prosulfocarb, Thiobencarb und Triallate; Triazine, wie z.B. Atrazin, Cyanazin, Simazin, Simetryne, Terbutryne und Ter-
- 15 butylazin; Triazinone, wie z.B. Hexazinon, Metamitron und Metribuzin; Sonstige, wie z.B. Aminotriazol, Benfuresate, Bentazone, Cinmethylin, Clomazone, Clopyralid, Difenzoquat, Dithiopyr, Ethofumesate, Fluorochloridone, Glufosinate, Glyphosate, Isoxaben, Pyridate, Quinchlorac, Quinmerac, Sulphosate und Tridiphane.

- Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden,
- 20 Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden.

- 25 Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

steinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylaryl-polyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise Anilide, wie z.B. Diflufenican und Propanil; Arylcarbonsäuren, wie z.B. Dichlorpicolinsäure, Dicamba und Picloram; Aryloxyalkansäuren, wie z.B. 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Fluroxypyr, MCPA, MCPP und Triclopyr; Aryloxy-phenoxy-alkansäureester, wie z.B. Diclofop-methyl, Fenoxaprop-ethyl, Fluazifop-butyl, Haloxypop-methyl und Quizalofop-ethyl; Azinone, wie z.B. Chloridazon und Norflurazon; Carbamate, wie z.B. Chlor-

gen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich insbesondere zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen
5 Kulturen sowohl im Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren.

Darüberhinaus zeigen die erfindungsgemäßen Wirkstoffe (I) auch interessante Nebenwirkungen, nämlich eine blattinsektizide Wirkung sowie fungizide Wirkungen, insbesondere gegen *Pyricularia oryzae* und gegen *Erysiphe graminis*.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche
10 Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen
15 Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare
20 Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage:

z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Ge-

Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet
5 werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex,
10 Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria,
15 Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale,
20 Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanla-
25

ferner basische Stickstoffverbindungen, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Diisobutylamin, Dicyclohexylamin, Ethyldiisopropylamin, Ethyldicyclohexylamin, N,N-Dimethylbenzylamin, N,N-Dimethyl-anilin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 2-Ethyl-, 4-Ethyl- und 5-Ethyl-
5 2-methyl-pyridin, 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), 1,8-Diazabicyclo-[5,4,0]-undec-7-en (DBU) und 1,4-Diazabicyclo-[2,2,2]-octan (DABCO).

Die Reaktionstemperaturen können bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20°C und +80°C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen -10°C
10 und +50°C.

Die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) werden die jeweils
15 benötigten Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der jeweils eingesetzten Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Reaktionen werden im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Säureakzeptors durchgeführt, und
20 das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der jeweils erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung erfolgt bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) jeweils nach üblichen Methoden (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Aus den erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) können gegebenenfalls Salze hergestellt werden. Man erhält solche Salze in einfacher Weise nach
25 üblichen Salzbildungsmethoden, beispielsweise durch Lösen oder Dispergieren einer Verbindung der Formel (I) in einem geeigneten Lösungsmittel, wie z.B. Methylenchlorid, Aceton, tert-Butyl-methylether oder Toluol, und Zugabe einer geeigneten Base. Die Salze können dann - gegebenenfalls nach längerem Rühren - durch Einengen oder Absaugen isoliert werden.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defoliantes, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter
30

Die Ausgangsstoffe der Formel (III) sind bekannte organische Syntheschemikalien.

Die bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Triazolinone sind durch die Formel (IV) allgemein definiert.

- 5 In Formel (IV) haben R^1 und R^2 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R^1 und R^2 angegeben wurden.

- 10 Die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. EP-A 283876, EP-A 294666, EP-A 301946, EP-A 298371, EP-A 341489, EP-A 399294, EP-A 398096, EP-A 422469, EP-A 425948, EP-A 431291, EP-A 477646, DE-OS 4110795).

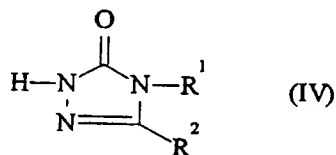
- 15 Die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) zur Herstellung der neuen Verbindungen der Formel (I) werden vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Als Verdünnungsmittel kommen dabei praktisch alle inerten organischen Lösungsmittel infrage. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische und aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Pentan, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Petrolether, Benzin, Ligroin, Benzol, Toluol, Xylol, Methylenchlorid, Ethylenchlorid, Chloroform, Tetrachlormethan, Chlorbenzol und o-Dichlorbenzol, Ether wie Diethyl- und Dibutylether, Glykoldimethylether und Diglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan, Ketone wie Aceton, Methyl-ethyl-, Methyl-isopropyl- und Methyl-isobutyl-keton, Ester wie Essigssäuremethylester und -ethylester, Nitrile wie z.B. Acetonitril und Propionitril, Amide wie z.B. Dimethylformamid, Dimethylacetamid und N-Methylpyrrolidon sowie Dimethylsulfoxid, Tetramethylsulfon und Hexamethylphosphorsäuretriamid.
- 20
- 25

- Als Säureakzeptoren können bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) alle üblicherweise für derartige Umsetzungen verwendbaren Säurebindemittel eingesetzt werden. Vorzugsweise infrage kommen Alkalimetallhydroxide wie z.B. Natrium- und Kaliumhydroxid, Erdalkalihydroxide wie z.B. Calciumhydroxid, Alkalicarbonat und -alkoholate wie Natrium- und Kaliumcarbonat, Natrium- und Kalium-tert-butylat,
- 30

- Methyl-5-ethylthio-, 4-Ethyl-5-methylthio-, 4-Ethyl-5-ethylthio-, 4-Cyclopropyl-5-methoxy-, 4-Cyclopropyl-5-ethoxy-, 4-Cyclopropyl-5-methylthio-, 4-Cyclopropyl-5-ethylthio-, 4-Methoxy-5-cyclopropyl-, 4-Ethoxy-5-cyclopropyl-, 4-Methoxy-5-ethoxy-, 4,5-Dimethoxy-, 4,5-Diethoxy-, 4-Methyl-5-dimethylamino-, 4-Ethyl-5-dimethylamino- und 4-Cyclopropyl-5-dimethylamino-2-chlorsulfonylaminocarbonyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on.

Die Chlorsulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (II) sind noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind als neue Stoffe Gegenstand einer vorgängigen Anmeldung (vgl. DE-P 4234801/LeA 29398 vom 15.10.1992).

- 10 Man erhält die Verbindungen der Formel (II), wenn man Triazolinone der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

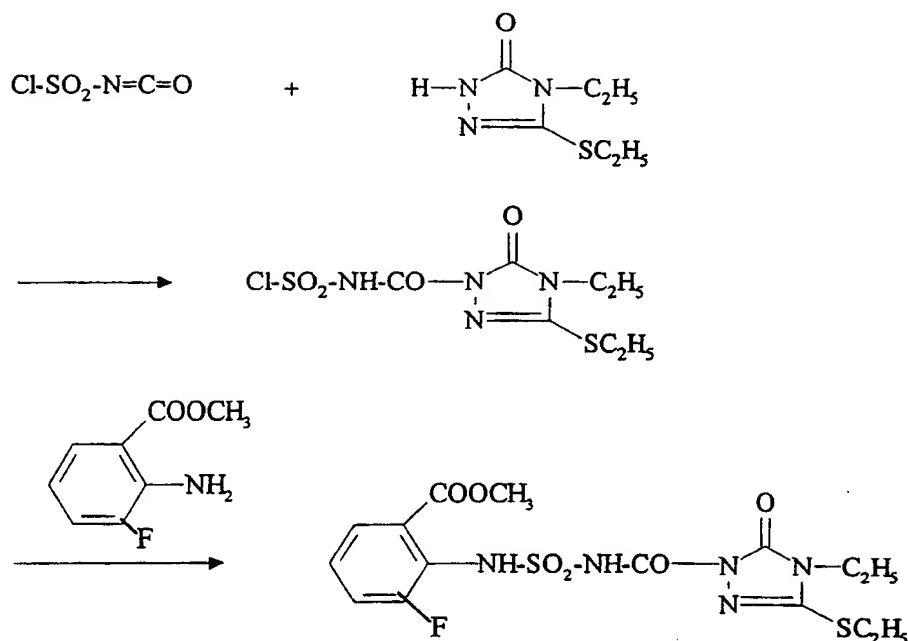
R^1 und R^2 die oben angegebene Bedeutung haben,

- 15 mit Chlorsulfonylisocyanat, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Methylenchlorid, bei Temperaturen zwischen -20°C und $+50^\circ\text{C}$ umgesetzt und auf übliche Weise aufarbeitet (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die bei den erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden nucleophilen Verbindungen sind durch die Formel (III) allgemein definiert.

- 20 In Formel (III) haben Q und R^3 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für Q und R^3 angegeben wurden.

- 11 -



Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Chlorsulfonylaminocarbonyl-triazolinone sind durch die Formel (II) allgemein definiert.

- 5 In Formel (II) haben R^1 und R^2 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R^1 und R^2 angegeben wurden.

Als Beispiele für die Ausgangsstoffe der Formel (II) seien genannt:

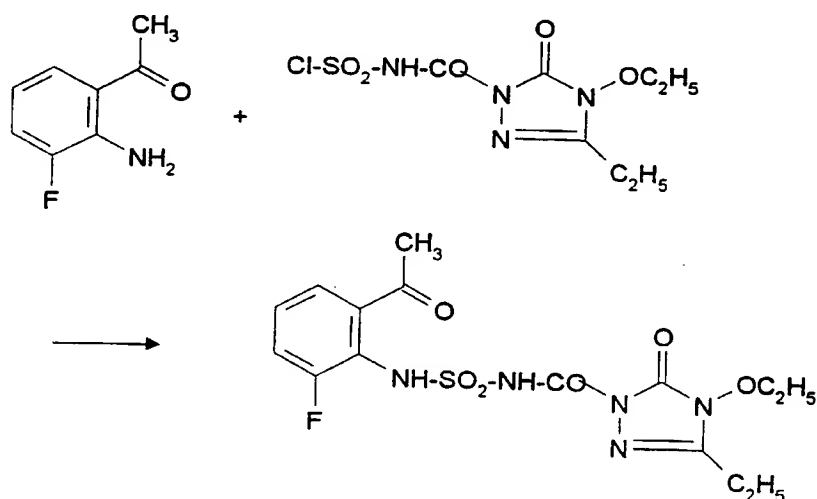
- 10 4,5-Dimethyl-, 4,5-Diethyl-, 4-Ethyl-5-methyl-, 5-Ethyl-4-methyl-, 4-Methyl-5-propyl-, 4-Ethyl-5-propyl-, 4-Cyclopropyl-5-ethyl-, 5-Cyclopropyl-4-methyl-, 5-Cyclopropyl-4-ethyl-, 4-Methyl-5-chlor-, 4-Ethyl-5-chlor-, 4-Methyl-5-brom-, 4-Ethyl-5-brom-, 4-Cyclopropyl-5-chlor-, 4-Cyclopropyl-5-brom-, 4-Methoxy-5-methyl-, 4-Ethoxy-5-methyl-, 4-Ethoxy-5-ethyl-, 4-Methoxy-5-ethyl-, 4-Methyl-5-methoxy-, 4-Ethyl-5-methoxy-, 4-Methyl-5-ethoxy-, 4-Ethyl-5-ethoxy-, 4-Methyl-5-methylthio-, 4-
- 15

die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- bzw. Zwischenprodukte. Diese Restedefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

- Die bei den Restedefinitionen genannten Kohlenwasserstoffreste, wie Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl, auch in Kombinationen mit Heteroatomen, wie in Alkoxy, Alkylthio oder Alkylamino, sind auch dann, wenn dies nicht ausdrücklich angegeben ist, geradkettig oder verzweigt.

Halogen steht im allgemeinen für Fluor, Chlor, Brom oder Iod, vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, insbesondere für Fluor oder Chlor.

- 10 Verwendet man beispielsweise 2-Chlorsulfonylaminocarbonyl-4-ethoxy-5-ethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und 2-Amino-3-fluor-acetophenon als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) durch das folgende Formelschema skizziert werden:



- 15 Verwendet man beispielsweise 4-Ethyl-5-ethylthio-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und Chlorsulfonylisocyanat sowie anschließend 2-Amino-6-fluor-benzoesäuremethylester als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

5 Cyano, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiert sind), durch Methylsulfonyloxy, Ethylsulfonyloxy, Methylaminosulfonyloxy, Ethylaminosulfonyloxy, Dimethylaminosulfonyloxy, Diethylaminosulfonyloxy, Trifluormethylsulfonyloxy, Dimethylaminocarbonyl oder Diethylaminocarbonyl, durch Cyclohexyl oder Cyclohexylmethyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Chlor, Methyl oder Ethyl substitu-iert sind) durch Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylamino, Phenylcarbonyl, Phenylmethyl oder Phenylethyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Tri-
10 fluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiert sind), durch Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Cyclopropylcarbonyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl (welche ge-gebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Methoxy oder Ethoxy substituiert sind), substituiertes Phenyl, Phenylmethyl oder Phenylethyl
15 steht, wobei einer der Substituenten von Alkyl verschieden ist,

R⁴ für Wasserstoff, Cyano, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Difluormethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Methoxycarbonylethyl, Ethoxycarbonylethyl, Allyl, Propargyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methoxy, Ethoxy, Allyloxy oder Benzyloxy steht oder für die Gruppierung Q¹-R⁵
20 steht, worin

Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und

R⁵ für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl oder Propyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Phenyl steht.
25

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für
30

Gegenstand der Erfindung sind insbesondere Verbindungen der Formel (I), in welcher

Q für Sauerstoff oder die Gruppierung $\begin{array}{c} \text{---N---} \\ | \\ \text{R} \end{array}$ steht,

- R¹ für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Dichlormethyl, Fluorethyl, Chlorethyl, Difluorethyl, Dichlorethyl, Trifluorethyl, Trichlorethyl, Chlordifluorethyl, Tetrafluorethyl, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, für Allyl, Chlorallyl, Dichlorallyl, Propargyl, für Cyclopropyl, Benzyl oder Phenyl, für Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für Allyloxy, n- oder i- oder s-Butoxy, für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, für Cyclopropylamino, Dimethylamino, Diethylamino oder Acetylamino steht,
- 10 R² für Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Cyanomethyl, Cyanoethyl, Cyclopropylmethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methylthiomethyl, Ethylthiomethyl, Methylthioethyl oder Ethylthioethyl, für Cyclopropyl, Difluorcyclopropyl oder Dichlorcyclopropyl, für Phenyl oder Benzyl, für Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, für Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Fluorethoxy, Difluorethoxy oder Trifluorethoxy, für Cyclopropylmethoxy, für Methoxymethoxy, Ethoxymethoxy, Methoxyethoxy oder Ethoxyethoxy, für Phenoxy oder Benzyloxy, für Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, für Fluorethylthio, Difluorethylthio oder Trifluorethylthio, Allylthio, Propargylthio, Cyclopropylmethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Phenylthio oder Benzylthio, für Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Phenylamino oder Benzylamino, für Dimethylamino, Diethylamino, Dipropylamino, Methylethylamino, Methylpropylamino, für Aziridino oder für jeweils gegebenenfalls durch Methyl oder Ethyl substituierendes Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino steht,
- 20 R³ für in 2- und in 6-Position (gleich oder verschieden) durch Fluor, Chlor, Brom, Formyl, Cyano, Carboxy, Nitro, durch Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor,

durch C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-C₁-C₄-alkyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sind), durch Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylamino, Phenylcarbonyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl (welche jeweils ge-
 5 gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-amino substituiert sind), durch C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₃-C₆-Cycloalkylcarbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, C₃-C₆-Cycloalkyl oder
 10 C₁-C₄-Alkoxy substituiert sind) substituiertes Phenyl, Naphthyl, Phenyl-C₁-C₄-alkyl oder Naphthyl-C₁-C₄-alkyl steht, wobei einer der Substituenten von Alkyl verschieden ist,

R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino oder
 15 C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkynyl, für C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, für C₁-C₆-Alkoxy, C₃-C₆-Alkenyloxy, Benzyloxy, Phenoxy oder Di-(C₁-C₄-alkoxy)-(thio)phosphoryl steht oder für die nachstehende Gruppierung Q¹-R⁵ steht, worin

20 Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und

R⁵ für gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für gegebenenfalls durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder für gegebenenfalls durch Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Phenyl
 25 steht.

Gegenstand der Erfindung sind weiter vorzugsweise Natrium-, Kalium-, Magnesium-, Calcium-, Ammonium-, C₁-C₄-Alkyl-ammonium-, Di-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, Tri-(C₁-C₄-alkyl)-ammonium-, C₅- oder C₆-Cycloalkyl-ammonium- und Di-(C₁-C₂-alkyl)-benzyl-ammonium-Salze von Verbindungen der Formel (I), in welcher Q, R¹,
 30 R² und R³ die oben vorzugsweise angegebenen Bedeutungen haben.

- 5 für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für Cyclohexenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkyl-sulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₆-Alkenyloxy, C₃-C₆-Alkinyloxy oder C₃-C₆-Cycloalkyloxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenoxy oder Benzoyloxy, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₃-C₆-Alkenylthio, C₃-C₆-Alkinylthio oder C₃-C₆-Cycloalkylthio, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenylthio oder Benzylthio, für C₁-C₆-Alkylamino oder C₃-C₆-Alkenylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenylamino oder Benzylamino, für Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino, oder für jeweils gegebenenfalls durch C₁-C₄-Alkyl substituiertes Aziridino, Pyrrolidino oder Morpholino steht,
- 15
- 20
- 25
- 30 R³ für jeweils mindestens zweifach (gleich oder verschieden) durch Halogen, Formyl, Cyano, Carboxy, Nitro, durch C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder C₁-C₄-Alkylsulfonyl (welche jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiert sind), durch C₁-C₄-Alkylsulfonyloxy, C₁-C₄-Alkylaminosulfonyloxy, Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminosulfonyloxy, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyloxy, Di-(C₁-C₄-alkyl)-aminocarbonyl oder C₁-C₄-Alkyaminocarbonyloxy,

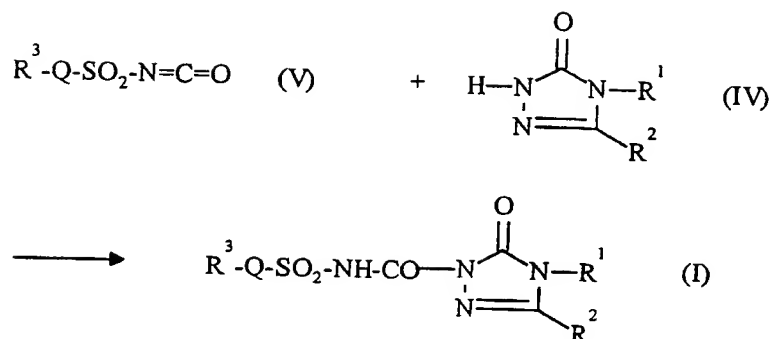
Die neuen Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I) zeichnen sich durch starke herbizide Wirksamkeit aus.

Überraschenderweise zeigen die neuen Verbindungen der Formel (I) erheblich stärkere herbizide Wirkung als das strukturell ähnliche bekannte 4,5-Dimethyl-2-(2-chlor-phenylsulfonyl-aminocarbonyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on.

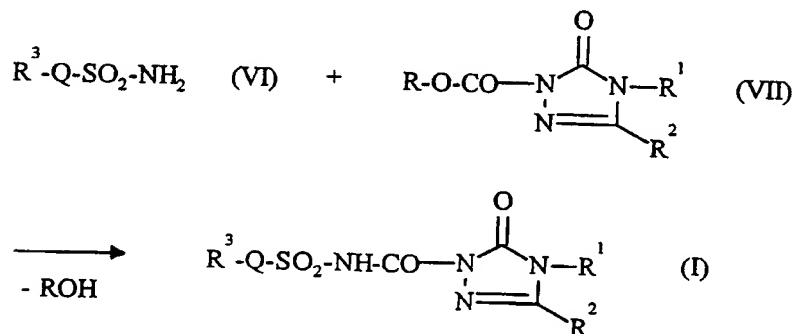
Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise Verbindungen der Formel (I), in welcher

- Q für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung $-N(R^4)-$ steht,
- 10 R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für C₂-C₁₀-Alkylidenamino, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylcarbonyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkynyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl-C₁-C₃-alkyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, Trifluormethyl, C₁-C₄-Alkoxy, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, Fluor- und/oder Chlor-substituiertes C₁-C₃-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Phenyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkoxy, für C₃-C₆-Alkenyloxy, für gegebenenfalls durch Fluor, Cyano, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₄-Alkylamino, C₃-C₆-Cycloalkylamino oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino oder für C₁-C₆-Alkanoylamino steht,
- 20
- 25
- R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Halogen, für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl oder C₂-C₆-Alkenyl,

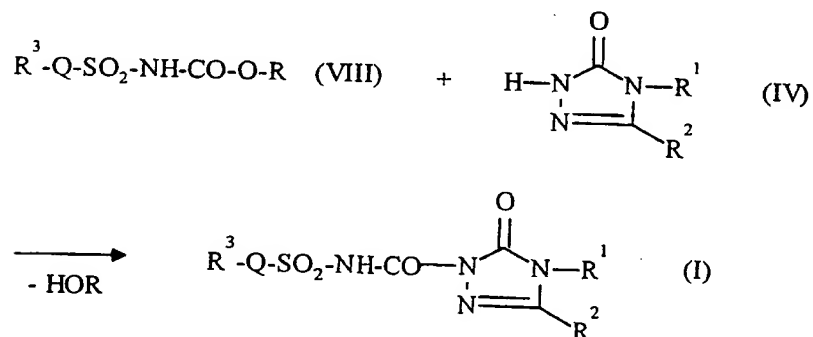
- 4 -



- (d) Umsetzung von Aminosulfonylverbindungen der Formel (VI) mit Oxycarbonyl-triazolinonen der Formel (VII) (R: Alkyl, Aralkyl, Aryl):



- 5 (e) Umsetzung von Sulfonylurethanen der Formel (VIII) mit Triazolinonen der Formel (IV) (R: Alkyl, Aralkyl, Aryl):



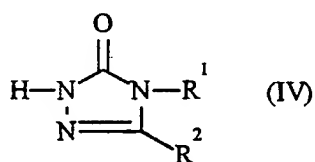
- 3 -

Q und R³ die oben angegebene Bedeutung haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder wenn man

- 5 (b) Triazolinone der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

R¹ und R² die oben angegebene Bedeutung haben,

- 10 mit Chlorsulfonylisocyanat, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt und die hierbei gebildeten Chlorsulfonylaminocarbonyltriazolinone der Formel (II) - oben - ohne Zwischenisolierung mit nucleophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III) - oben - gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

- 15 und gegebenenfalls die nach Verfahren (a) oder (b) erhaltenen Verbindungen der Formel (I) nach üblichen Methoden in Salze überführt.

Weitere mögliche Herstellungsmethoden für die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) sind nachstehend aufgeführt, wobei jeweils Q, R¹, R² und R³ die oben angegebene Bedeutung haben:

- (c) Umsetzung von Isocyanaten der Formel (V) mit Triazolinonen der Formel (IV):

- 2 -

loalkenyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Cycloalkyloxy, Aryloxy, Aralkyloxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkenylthio, Alkynylthio, Cycloalkylthio, Arylthio, Aralkylthio, Alkylamino, Alkenylamino, Arylamino, Aralkylamino, Dialkylamino, Aziridino, Pyrrolidino, Piperidino oder Morpholino steht,

R³ für jeweils mindestens zweifach substituiertes Aryl oder Arylalkyl steht, wobei einer der Substituenten von Alkyl verschieden ist,

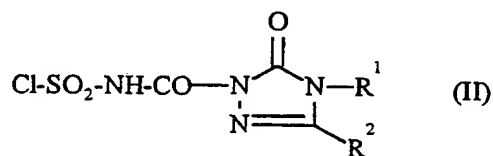
R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, Alkoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Aralkoxy, Aryloxy oder Dialkoxy(thio)phosphoryl steht oder für die nachstehende Gruppierung Q¹-R⁵ steht, worin

Q¹ für -CO- oder -SO₂- steht und

R⁵ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl oder Aryl steht, sowie Salze von Verbindungen der Formel (I) gefunden.

15 Man erhält die neuen Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der Formel (I), wenn man

(a) Chlorsulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (II)



in welcher

R¹ und R² die oben angegebene Bedeutung haben,

mit nucleophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III)

20 $\text{R}^3\text{-Q-H} \quad \text{(III)}$

in welcher

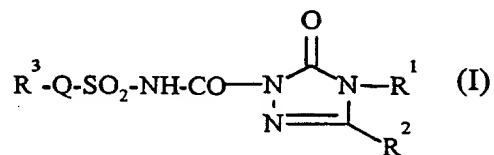
SUBSTITUIERTE SULFONYLAMINOCARBONYLTRIAZOLINONE UND IHRE VERWENDUNG ALS HERBIZIDE

5

Die Erfindung betrifft neue substituierte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

Es ist bereits bekannt, daß bestimmte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone, wie z.B. 4,5-Dimethyl-2-(2-chlor-phenylsulfonyl-aminocarbonyl)-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-
 10 3-on, herbizide Eigenschaften aufweisen (vgl. EP-A 341 489; vgl. auch EP-A 422 469; EP-A 425 948; EP-A 431 291). Die Wirkung dieser Verbindungen ist jedoch nicht in allen Belangen zufriedenstellend.

Es wurden nun die neuen Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der allgemeinen Formel (I),



15 in welcher

Q für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung -N(R⁴)- steht,

R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkylidenamino oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Aralkyl, Aryl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkylamino, Cycloalkylamino, Dialkylamino,
 20 Alkanoylamino steht,

R² für Wasserstoff, Hydroxy, Mercapto, Amino, Halogen oder für einen jeweils gegebenenfalls substituierten Rest aus der Reihe Alkyl, Cycloalkyl, Alkenyl, Cyc-

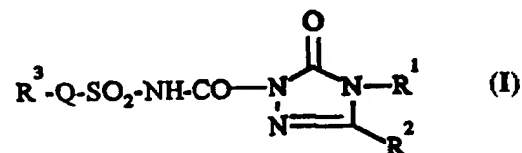
LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

| | | | | | |
|----|--------------------------------|----|-----------------------------------|----|--------------------------------|
| AT | Österreich | GA | Gabon | MR | Mauretanien |
| AU | Australien | GB | Vereinigtes Königreich | MW | Malawi |
| BB | Barbados | GE | Georgien | NE | Niger |
| BE | Belgien | GN | Guinea | NL | Niederlande |
| BF | Burkina Faso | GR | Griechenland | NO | Norwegen |
| BG | Bulgarien | HU | Ungarn | NZ | Neuseeland |
| BJ | Benin | IE | Irland | PL | Polen |
| BR | Brasilien | IT | Italien | PT | Portugal |
| BY | Belarus | JP | Japan | RO | Rumänien |
| CA | Kanada | KE | Kenya | RU | Russische Föderation |
| CF | Zentrale Afrikanische Republik | KG | Kirgisistan | SD | Sudan |
| CG | Kongo | KP | Demokratische Volksrepublik Korea | SE | Schweden |
| CH | Schweiz | KR | Republik Korea | SI | Slowenien |
| CI | Côte d'Ivoire | KZ | Kasachstan | SK | Slowakei |
| CM | Kamerun | LI | Liechtenstein | SN | Senegal |
| CN | China | LK | Sri Lanka | TD | Tschad |
| CS | Tschechoslowakei | LU | Luxemburg | TG | Togo |
| CZ | Tschechische Republik | LV | Lettland | TJ | Tadschikistan |
| DE | Deutschland | MC | Monaco | TT | Trinidad und Tobago |
| DK | Dänemark | MD | Republik Moldau | UA | Ukraine |
| ES | Spanien | MG | Madagaskar | US | Vereinigte Staaten von Amerika |
| FI | Finnland | ML | Mali | UZ | Usbekistan |
| FR | Frankreich | MN | Mongolei | VN | Vietnam |

PCTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

| | | | |
|--|--|--|--|
| (51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : C07D 249/12, 249/14, A01N 47/38, C07F 9/6518, A01N 57/32 | | A1 | (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 95/27703 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 19. Oktober 1995 (19.10.95) |
| (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP95/01149 (22) Internationales Anmeldedatum: 27. März 1995 (27.03.95) (30) Prioritätsdaten: P 44 11 913.5 7. April 1994 (07.04.94) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): FINDEISEN, Kurt [DE/DE]; Dünfelder Strasse 28, D-51375 Leverkusen (DE). LINKER, Karl-Heinz [DE/DE]; Albert-Schweitzer-Strasse 3, D-51377 Leverkusen (DE). GESING, Ernst, Rudolf [DE/DE]; Trillser Graben 4, D-40699 Erkrath-Hochdahl (DE). KLUTH, Joachim [DE/DE]; Virneburgstrasse 69, D-40764 Langenfeld (DE). MÜLLER, Klaus-Helmut [AT/DE]; Solfstrasse 19, D-40593 Düsseldorf (DE). RIEBEL, Hans-Jochem [DE/DE]; In der Beek 92, D-42113 Wuppertal (DE). KÖNIG, Klaus [DE/DE]; Zum Hahnberg 40, D-51519 Odenthal (DE). SANTEL, Hans-Joachim [DE/DE]; Grünstrasse 9a, D-51371 Leverkusen (DE). DOLLINGER, Markus [DE/DE]; Burscheider Strasse 154b, D-51381 Leverkusen (DE). | | (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE). (81) Bestimmungsstaaten: AU, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, FI, HU, JP, KR, KZ, LK, NO, NZ, PL, RO, RU, SK, UA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> | |
| (54) Title: SUBSTITUTED SULPHONYLAMINOCARBONYLTRIAZOLINONES AND THEIR USE AS HERBICIDES (54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE SULFONYLAMINOCARBONYLTRIAZOLINONE UND IHRE VERWENDUNG ALS HERBIZIDE (57) Abstract The invention concerns substituted sulphonylaminocarbonyltriazolinones of formula (I) in which Q is oxygen, sulphur or the -N(R ⁴)- grouping, R ³ is an aryl or arylalkyl group with at least two substituents, one of which is not alkyl, and R ¹ , R ² and R ⁴ are hydrogen or any of a number of other substituents. Plus salts of compounds of formula (I), methods of preparing such compounds and their use as herbicides. (57) Zusammenfassung Die Erfindung betrifft neue substituierte Sulfonylaminocarbonyltriazolinone der Formel (I), in welcher Q für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung -N(R ⁴)- steht, R ³ für jeweils mindestens zweifach substituiertes Aryl oder Arylalkyl steht, wobei einer der Substituenten von Alkyl verschieden ist, und R ¹ , R ² und R ⁴ für Wasserstoff oder verschiedene Substituenten stehen, sowie Salze von Verbindungen der Formel (I), Verfahren zur Herstellung der neuen Verbindungen und deren Verwendung als Herbizide. | | | |





Europäisches
Patentamt

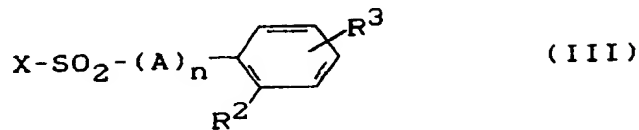
EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 93 10 7139

| EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE | | | |
|---|--|--|---|
| Kategorie | Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile | Betrifft Anspruch | KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl.5) |
| X | EP-A-0 482 349 (BASF AG) 29. April 1992 Tabelle 1 A=A1-**, B=(Iso)oxazole, (Iso)thiazole, Oxadiazole oder Thiadiazole * Anspruch 1 * | 1-8 | C07D261/06 A01N43/00 C07D263/30 C07D271/06 C07D271/08 C07D277/20 C07D285/08 |
| D,X | EP-A-0 459 244 (BAYER AG) 4. Dezember 1991 Tabelle 1 und 2 R2=orthosubstituiertes-Phenyl * Anspruch 1 * | 1-8 | |
| D,X | DE-A-4 029 753 (BASF AG) 26. März 1992 Tabelle 1 A=A1-**, B=(Iso)oxazole, (Iso)thiazole, Thiadiazole * Anspruch 1 * | 1-8 | |
| D,A | EP-A-0 244 166 (E.I. DU PONT DE NEMOURS) 4. November 1987 * Anspruch 1 * | 1-8 | |
| D,A | US-A-4 838 925 (E.I. DU PONT DE NEMOURS) 13. Juni 1989 * Anspruch 1 * | 1-8 | |
| | | | RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.5) |
| | | | C07D A01N |
| Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt | | | |
| Recherchenort MÜNCHEN | | Abschlußdatum der Recherche 25 AUGUST 1993 | Prüfer GETTINS M.P. |
| KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE | | | |
| X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtschriftliche Offenbarung P : Zwischenliteratur | | I : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus andern Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument | |

mit Sulfonylierungsmitteln der allgemeinen Formel (III)



in welcher

n, A, R² und R³ die oben angegebene Bedeutung haben und
X für Halogen steht,

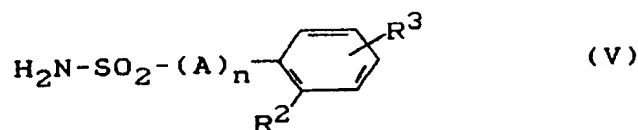
gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder daß man

(b) Carbonsäuren der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

R¹ die oben angegebene Bedeutung hat,
oder reaktionsfähige Derivate der Carbonsäuren der Formel (IV)
mit Aminosulfonylverbindungen der allgemeinen Formel (V)



in welcher

n, A, R¹ und R² die oben angegebene Bedeutung haben,
oder mit reaktionsfähigen Derivaten der Verbindungen der Formel (V)

gegebenenfalls in Gegenwart von Reaktionshilfsmitteln und gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln umgesetzt und gegebenenfalls die nach Verfahren (a) oder (b) erhaltenen Produkte nach üblichen Methoden in Salze überführt.

5. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem sulfonylierten Carbonsäureamid der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 oder 4.
6. Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen, dadurch gekennzeichnet, daß man sulfonylierte Carbonsäureamide der Formel (I) gemäß Ansprüchen 1 oder 4 auf die Pflanzen und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
7. Verwendung von sulfonylierten Carbonsäureamiden der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 oder 4 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.
8. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man sulfonylierte Carbonsäureamide der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 oder 4 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Substanzen vermischt.

methylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, Propylamino, Isopropylamino und/oder Dimethylamino substituiert ist,

R^2 für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Carboxy, Phenyl, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, 2-Chlor-ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Propylsulfonyl, Dimethylaminosulfonyl, Diethylaminosulfonyl, N-Methoxy-N-methyl-aminosulfonyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Propoxycarbonyl, Isopropoxycarbonyl, Chlorethoxycarbonyl oder Methoxyethoxycarbonyl, steht und

R^3 für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methyl steht, sowie deren Salze (I) mit Basen, wie z.B. Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydroxid, -hydrid, -amid oder -carbonat, Natrium- oder Kalium- C_1 - C_4 -alkanolaten, Ammoniak, C_1 - C_4 -Alkylaminen, Di- $(C_1$ - C_4 -alkyl)-aminen, Tri- $(C_1$ - C_4 -alkyl)-aminen oder Tris-(2-hydroxyethyl)amin.

3. Sulfonylierte Carbonsäureamide der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

n für die Zahlen 0 oder 1 steht,

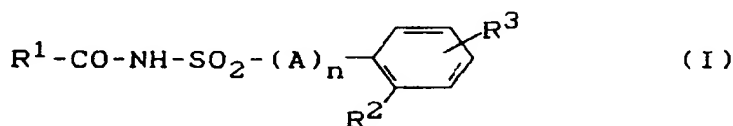
A für Methylen steht,

R^1 für 5-Methyl-1,2,4-oxadiazol-3-yl, 5-Ethyl-1,2,4-oxadiazol-3-yl, 5-Propyl-1,2,4-oxadiazol-3-yl, 5-Isopropyl-1,2,4-oxadiazol-3-yl, 4-Methyl-1,3-oxazol-2-yl, 4-Ethyl-1,3-oxazol-2-yl, 5-Methyl-1,3-oxazol-2-yl, 5-Ethyl-1,3-oxazol-2-yl oder 4,5-Dimethyl-1,3-oxazol-2-yl steht,

R^2 für Trifluormethyl, Phenyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl, steht und

R^3 für Wasserstoff, Chlor oder Methyl steht, sowie deren Salze mit Basen wie z.B. Natrium-, Kalium- oder Calciumhydroxid, -hydrid, -amid oder -carbonat, Natrium- oder Kalium- C_1 - C_4 -alkyl)-aminen, tri- $(C_1$ - C_4 -alkyl)-amiden oder Tris(2-hydroxyethyl)amin.

4. Verfahren zur Herstellung von sulfonylierten Carbonsäureamiden der allgemeinen Formel (I)



in welcher

n für die Zahlen 0 oder 1 steht,

A für Sauerstoff, Imino (NH) oder Methylen (CH_2) steht,

R^1 für einen fünfgliedrigen Heteroarylrest aus der Reihe Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, Oxadiazolyl, Thiadiazolyl steht, welcher gegebenenfalls einfach oder mehrfach, insbesondere einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch Halogen oder durch gegebenenfalls halogen-substituiertes C_1 - C_6 -Alkyl, Phenyl, C_1 - C_6 -Alkoxy, C_1 - C_6 -Alkylthio, C_1 - C_6 -Alkylsulfinyl, C_1 - C_6 -Alkylsulfonyl, C_1 - C_6 -Alkylamino oder Di- $(C_1$ - C_4 -alkyl)-amino substituiert ist,

R^2 für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Carboxy, Phenyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylsulfinyl, C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl, für Di- $(C_1$ - C_2 -alkyl)-aminosulfonyl, für N- $(C_1$ - C_2 -Alkyl)-N- $(C_1$ - C_2 -alkoxy)-aminosulfonyl oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder C_1 - C_2 -Alkoxy substituiertes C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl steht, und

R^3 für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methyl steht,

sowie Salze von Verbindungen der Formel (I)

dadurch gekennzeichnet, daß man

(a) Carbonsäureamide der allgemeinen Formel (II)



in welcher

R^1 die oben angegebene Bedeutung hat,

Post-emergence-Test

- Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

10 Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben, so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

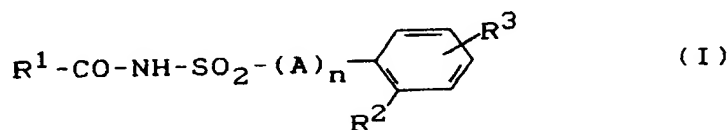
Es bedeuten:

- | | | |
|----|-------|--|
| 15 | 0 % | = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle) |
| | 100 % | = totale Vernichtung |

Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit ebenso wie in der Nutzpflanzenselektivität gegenüber dem Stand der Technik zeigen in diesem Test z.B. die Verbindungen gemäß folgender Herstellungsbeispiele: (2), (3), (3a), (3b), (3c), (4), (5), (6), (14), (15), (20), (21), (25), (26), (28).

Patentansprüche

1. Sulfonylierte Carbonsäureamide der allgemeinen Formel (I)



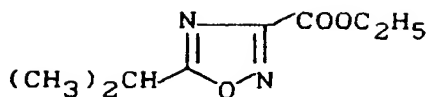
in welcher

- n für die Zahlen 0 oder 1 steht,
A für Sauerstoff, Imino (NH) oder Methylen (CH₂) steht,
R¹ für einen fünfgliedrigen Heteroarylrest aus der Reihe Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, Oxadiazolyl, Thiadiazolyl steht, welcher gegebenenfalls einfach oder mehrfach, insbesondere einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch Halogen oder durch gegebenenfalls halogen-substituiertes C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, Phenyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Alkylsufinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₆-Alkylamino oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino substituiert ist,
R² für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Carboxy, Phenyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsufinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, für Di-(C₁-C₂-alkyl)-aminosulfonyl, für N-(C₁-C₂-Alkyl)-N-(C₁-C₂-alkoxy)-aminosulfonyl oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder C₁-C₂-Alkoxy substituiertes C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl steht, und
R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methyl steht,
sowie Salze von Verbindungen der Formel (I).

2. Sulfonylierte Carbonsäureamide der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

- | | | |
|----|----------------|--|
| 50 | n | für die Zahlen 0 oder 1 steht, |
| | A | für Sauerstoff, Imino (NH) oder Methylene (CH ₂) steht, |
| | R ¹ | für einen fünfgliedrigen Heteroarylrest aus der Reihe Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, 1,2,4-Oxadiazolyl, 1,3,4-Oxadiazolyl, 1,2,4-Thiadiazolyl, 1,3,4-Thiadiazolyl steht, welcher gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Propyl, Isopropyl, Butyl, Isobutyl, |
| 55 | | sec-Butyl, tert-Butyl, Fluormethyl, Chlormethyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlorfluormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Brommethyl, Dibrommethyl, Methoxymethyl, Phenyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, Isopropoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Propylthio, Isopropylthio, Difluor- |

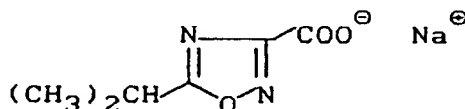
3. Stufe:



23,9 g (0,11 Mol) N-Isobutyroylaminomalonsäuremonoethylester werden in 100 ml Eisessig gelöst. Nach dem Abkühlen auf 0°C wird zu dieser Lösung eine Lösung von 8,3 g (0,12 Mol) Natriumnitrit in 20 ml Wasser getropft. Man rührt das Reaktionsgemisch 15 Stunden bei Raumtemperatur, verdünnt mit 100 ml Wasser und extrahiert mit 200 ml Diethylether. Die Etherphase wird abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet, filtriert und eingeeengt.

Als öliges Rückstand verbleiben 17,2 g (85% der Theorie) 5-Isopropyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäureethylester.

Beispiel (IV-2)



9,2 g (0,05 Mol) 5-Isopropyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäureethylester werden in 100 ml Ethanol gelöst, 2 g Natriumhydroxid, gelöst in 10 ml Wasser zugegeben und 4 Stunden bei Raumtemperatur gerührt. Dann wird das Reaktionsgemisch unter vermindertem Druck eingeeengt und der Rückstand mit Diethylether verrührt. Das Produkt wird abgesaugt und an der Luft getrocknet.

Man erhält 8,3 g (93% der Theorie) des Natrium-Salzes der 5-Isopropyl-1,2,4-oxadiazol-3-carbonsäure, welches bei 137°C unter Zersetzung schmilzt.

Anwendungsbeispiele

Beispiel A

Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykolether

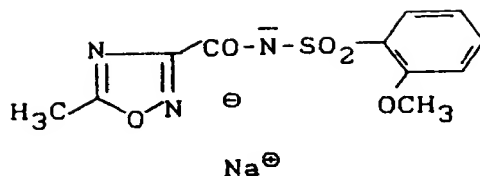
Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät und nach 24 Stunden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffs pro Flächeneinheit. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle. Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

Eine sehr gute herbizide Wirksamkeit bei guter Nutzpflanzenselektivität zeigen in diesem Test z.B. die Verbindungen gemäß folgender Herstellungsbeispiele: (2), (3), (3a), (3b), (3c), (14), (19), (20), (21), (25), (26) und (28).

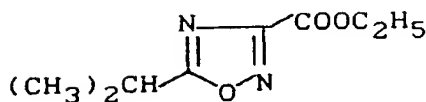


Fp.: ~ 100 °C (Zersetzung)

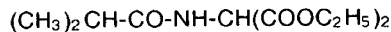
Ausgangsstoffe der Formel (IV)

- bzw. reaktionsfähige Derivate

Beispiel (IV-1)



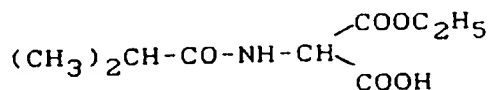
1. Stufe:



48,7 g (0,23 Mol) Aminomalonsäurediethylester-hydrochlorid werden in 500 ml Methylenchlorid gelöst und die Lösung auf -10°C abgekühlt. Dann gibt man 50,5 g (0,5 Mol) Triethylamin zu und tropft anschließend 25,6 g (0,24 Mol) Isobuttersäurechlorid zu. Man läßt das Reaktionsgemisch auf Raumtemperatur kommen, rührt noch 15 Stunden bei Raumtemperatur, filtriert den Niederschlag ab, engt das Filtrat ein und bringt den Rückstand durch Verreiben mit Diethylether zur Kristallisation.

Man erhält 55 g (0,22 Mol) (98% der Theorie) N-Isobutyroylaminomalonsäurediethylester vom Schmelzpunkt 74°C.

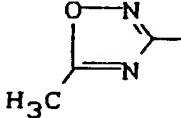
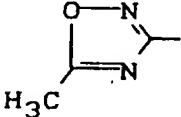
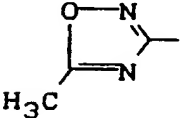
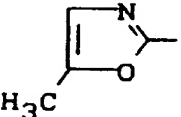
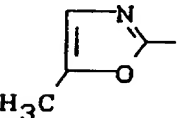
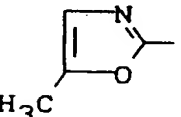
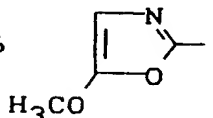
2. Stufe:



53,9 g (0,22 Mol) N-Isobutyroylaminomalonsäurediethylester werden in 200 ml Ethanol gelöst. Zu dieser Lösung tropft man unter Kühlung eine Lösung von 12,3 g (0,22 Mol) Kaliumhydroxid in 20 ml Wasser so zu, daß 25°C nicht überschritten werden. Man rührt das Reaktionsgemisch 48 Stunden bei 20°C bis 25°C, neutralisiert unter Kühlung mit 37%iger Salzsäure, saugt das Reaktionsprodukt ab, wäscht mit Diethylether nach und trocknet es im Exsikkator.

Man erhält 25,6 g (53,7% der Theorie) N-Isobutyroylaminomalonsäuremonoethylester vom Schmelzpunkt 116°C.

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|----|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 1030 |  | NH | 1 | CF ₃ | - | |
| 1031 |  | NH | 1 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 1032 |  | NH | 1 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 1033 |  | NH | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 1034 |  | NH | 1 | C ₆ H ₅ | - | |
| 1035 |  | NH | 1 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 1036 |  | NH | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | |

Analog Beispiel 3 kann auch das Natriumsalz der in Tabelle 1 als Beispiel 27 aufgeführten Verbindung (27a) erhalten werden:

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

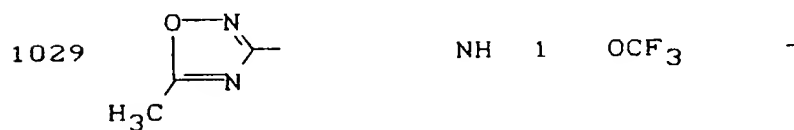
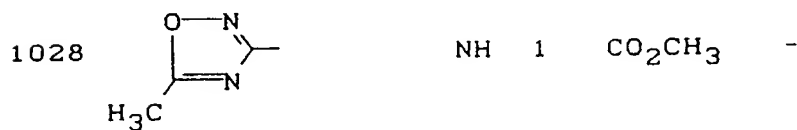
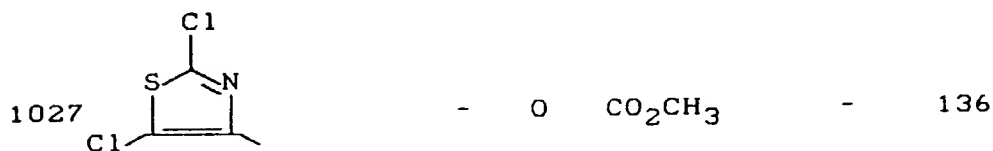
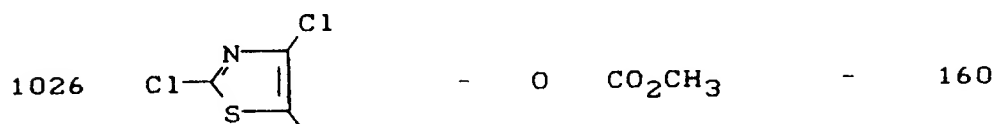
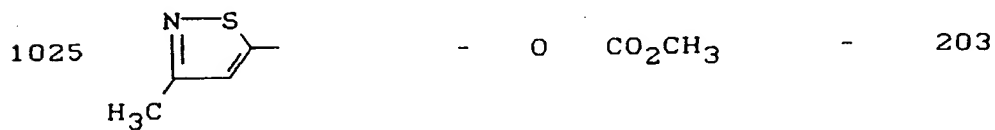
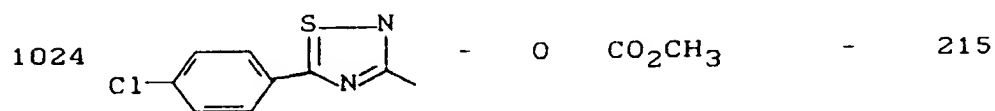
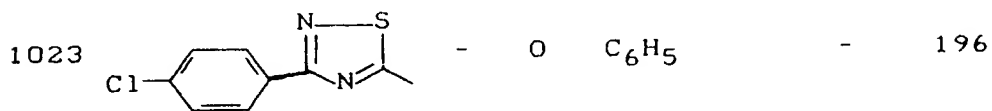


Tabelle 1 - Fortsetzung

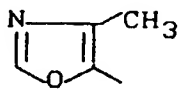
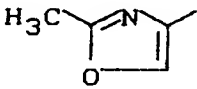
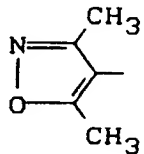
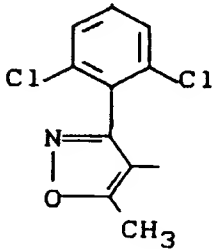
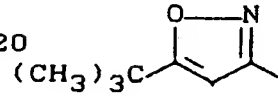
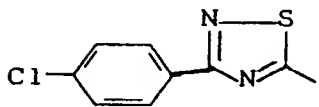
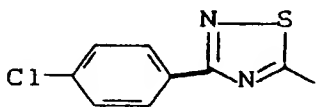
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 1016 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 113 |
| 1017 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 137 |
| 1018 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 119 |
| 1019 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 135 |
| 1020 |  | - | 0 | OC ₂ CH ₃ | - | 184 |
| 1021 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | 165 |
| 1022 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 215 |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 1009 | | - | 0 | OCF ₃ | - | 115 |
| 1010 | | - | 0 | Cl | - | 140 |
| 1011 | | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | 143 |
| 1012 | | - | 0 | OC ₃ H ₇ -n | - | 101 |
| 1013 | | - | 0 | OC ₃ H ₇ -i | - | 128 |
| 1014 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | 152 |
| 1015 | | - | 0 | CO ₂ C ₃ H ₇ -n | - | 151 |

Tabelle 1 - Fortsetzung

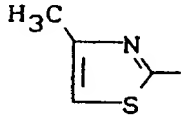
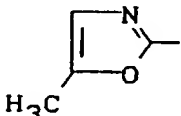
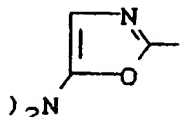
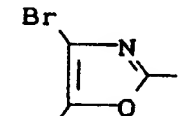
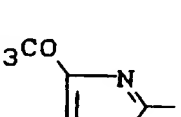
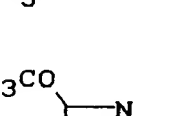
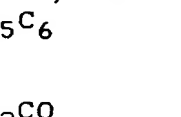
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 1002 |  | - | 0 | CH ₃ | (6)-Cl | 209 |
| 1003 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | 145 |
| 1004 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 135 |
| 1005 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 186 |
| 1006 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 92 |
| 1007 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 186 |
| 1008 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | 189 |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 995 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 996 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 997 | | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 998 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 999 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | 106 |
| 1000 | | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | 159 |
| 1001 | | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | 160 |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|---------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|---------------------------------|---------------------------|

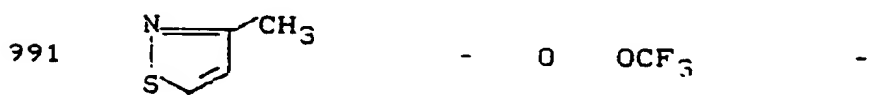
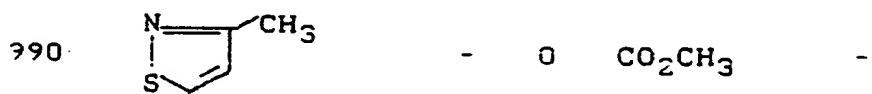
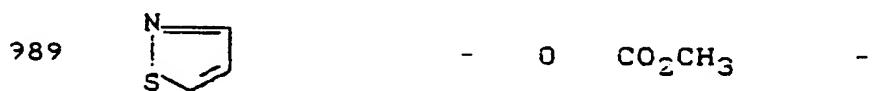


Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

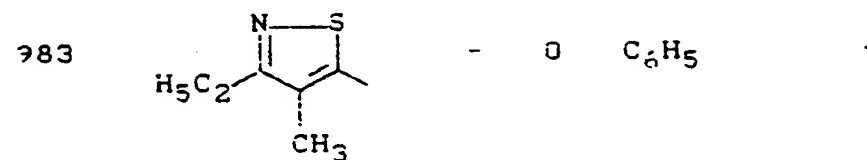
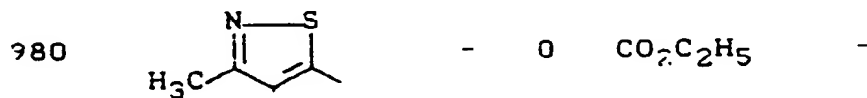
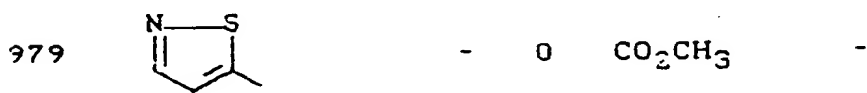


Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

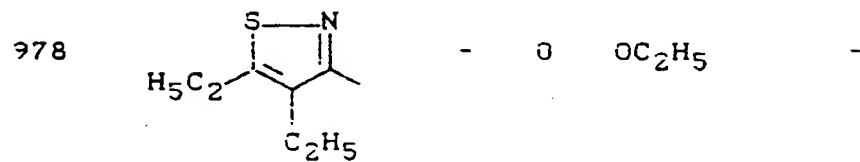
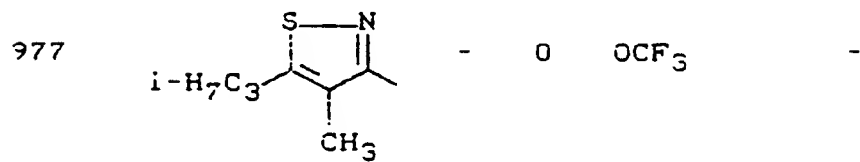
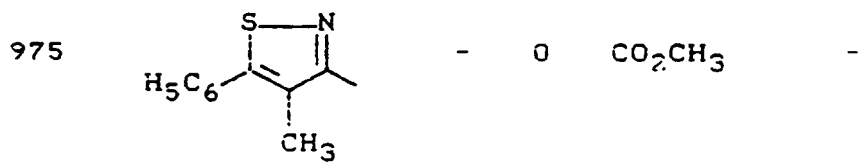
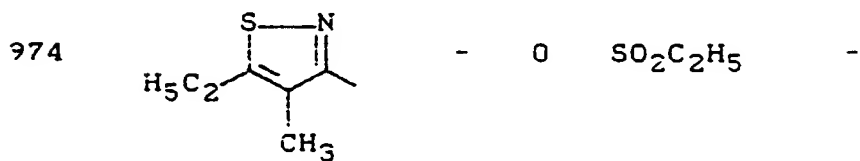


Tabelle 1 - Fortsetzung

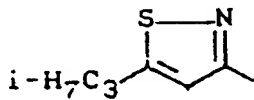
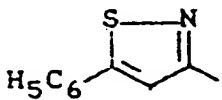
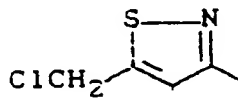
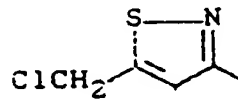
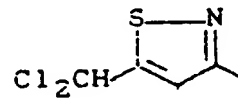
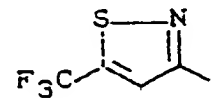
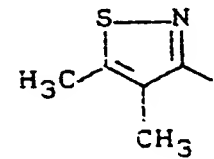
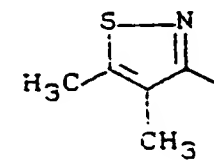
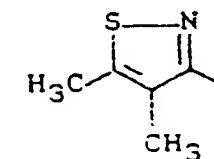
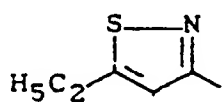
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|-----------------|---|---------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 963 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 964 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 965 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 966 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 967 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 968 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 969 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 970 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 971 |  | - | 0 | Cl | - | - |

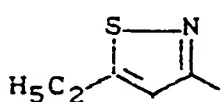
Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

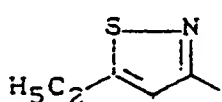
| | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|
| 953 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|

| | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|
| 954 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - |
|-----|---|---|---|---|---|

| | | | | | |
|-----|---|---|---|------------------|---|
| 955 |  | - | 0 | OCH ₃ | - |
|-----|---|---|---|------------------|---|

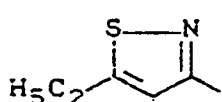
| | | | | | |
|-----|---|---|---|------------------|---|
| 956 |  | - | 0 | SCH ₃ | - |
|-----|---|---|---|------------------|---|

| | | | | | |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|
| 957 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|

| | | | | | |
|-----|---|---|---|------------------|---|
| 958 |  | - | 0 | OCF ₃ | - |
|-----|---|---|---|------------------|---|

| | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|
| 959 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - |
|-----|---|---|---|---|---|

| | | | | | |
|-----|---|---|---|-------------------------------|---|
| 960 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - |
|-----|---|---|---|-------------------------------|---|

| | | | | | |
|-----|---|-----------------|---|---------------------------------|---|
| 961 |  | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - |
|-----|---|-----------------|---|---------------------------------|---|

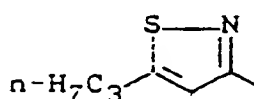
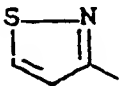
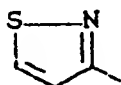
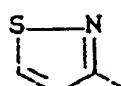
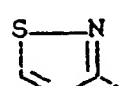

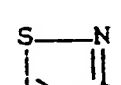
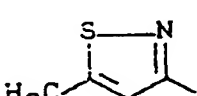
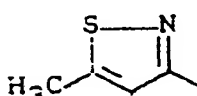
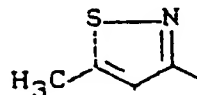
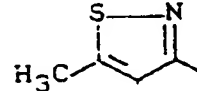
| | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|
| 962 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 943 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 944 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 945 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 946 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 947 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 948 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 949 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 950 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 951 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 952 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |

Tabell 1 - Fortsetzung

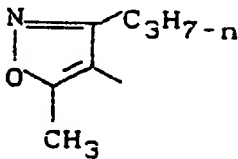
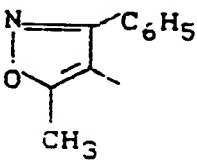
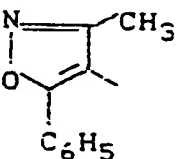
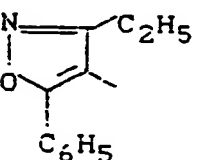
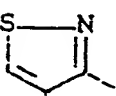
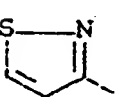
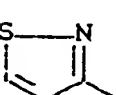
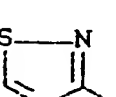
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 935 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 936 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 937 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 938 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 939 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 940 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 941 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 942 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

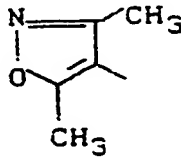
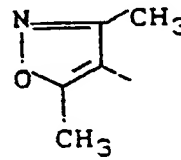
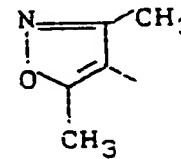
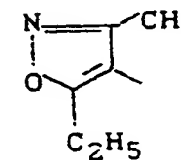
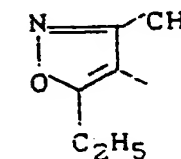
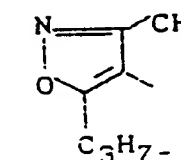
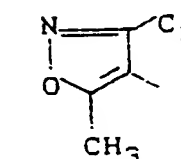
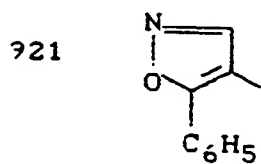
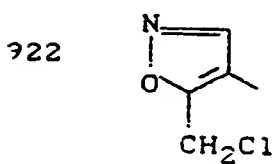
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 928 |  | - | 0 | SC ₃ H ₇ -i | - | - |
| 929 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 930 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H ₇ -i | - | - |
| 931 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 932 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 933 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 934 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

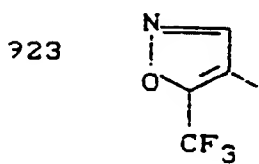
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|



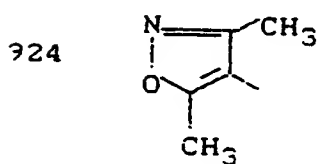
- 0 CO₂CH₃ -



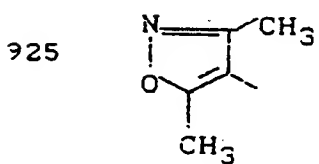
- 0 CO₂CH₃ -



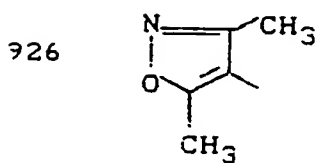
- 0 CO₂CH₃ -



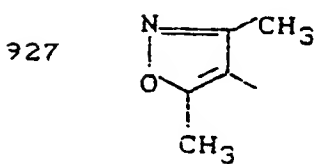
- 0 CO₂C₂H₅ -



- 0 CO₂CH₃ (6)-Cl



- 0 OCF₃ -



- 0 OC₂H₅ -

Tabelle 1 - Fortsetzung

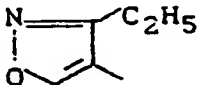
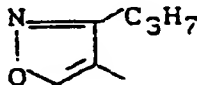
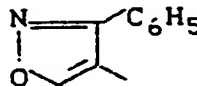
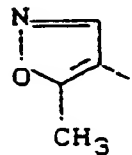
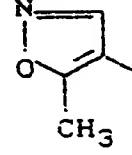
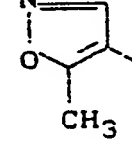
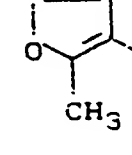
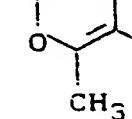
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 913 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 914 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 915 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 916 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 917 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 918 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |
| 919 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 920 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

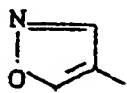
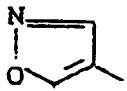
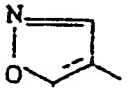
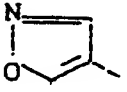
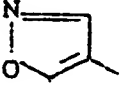
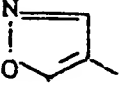
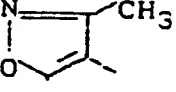
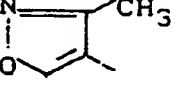
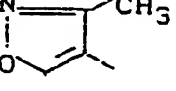

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 903 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 904 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 905 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 906 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 907 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 908 |  | - | 0 | C ₃ H ₇ | - | - |
| 909 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 910 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 911 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 912 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

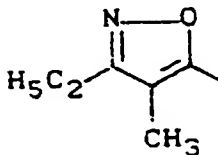
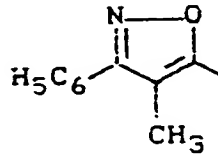
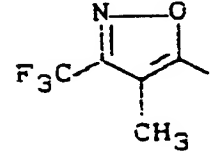
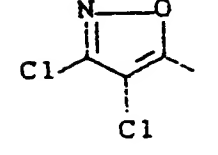
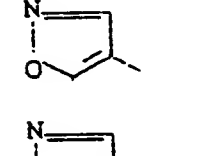
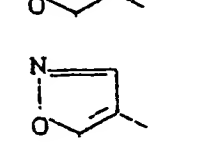
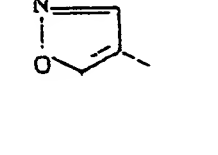

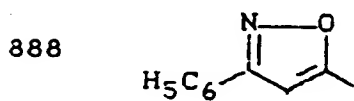
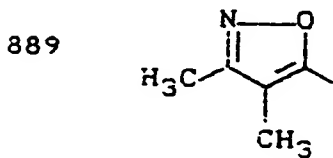
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 895 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 896 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 897 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 898 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 899 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 900 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 901 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 902 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

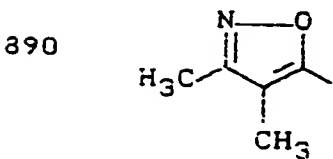
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|



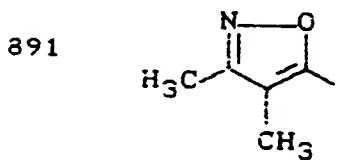
- 0 CO₂CH₃ -



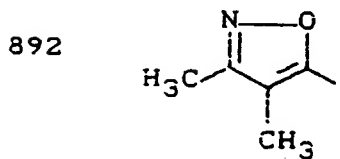
- 0 CO₂CH₃ -



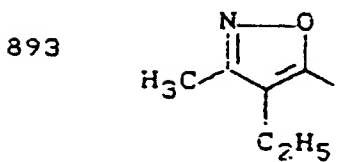
CH₂ 1 CO₂CH₃ -



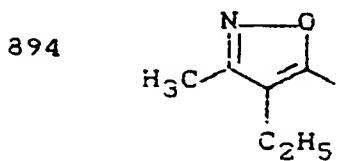
- 0 OCHF₂ -



- 0 C₆H₅ -



- 0 CO₂CH₃ -



- 0 OC₂H₅ -

Tabelle 1 - Fortsetzung

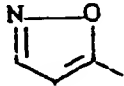
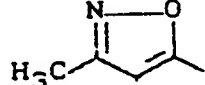
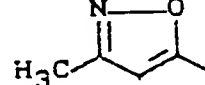
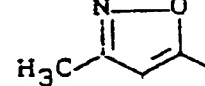
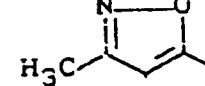
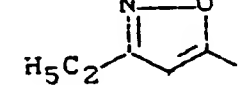
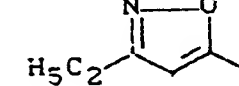
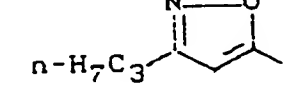
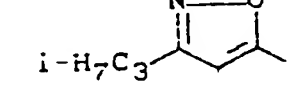
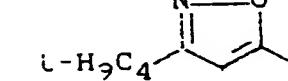
| Bsp.- Nr. | R^1 | A | n | R^2 | (Posi- tion-) R^3 | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|-----------------|---------------------------|---------------------------|
| 878 |  | - | 0 | $OCHF_2$ | - | - |
| 879 |  | - | 0 | $CO_2C_2H_5$ | - | - |
| 880 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 881 |  | - | 0 | OCH_3 | - | - |
| 882 |  | - | 0 | OC_2H_5 | - | - |
| 883 |  | - | 0 | CO_2CH_3 | - | - |
| 884 |  | - | 0 | OCF_3 | - | - |
| 885 |  | - | 0 | $SO_2N(CH_3)_2$ | - | - |
| 886 |  | - | 0 | C_6H_5 | - | - |
| 887 |  | - | 0 | CO_2CH_3 | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

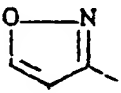
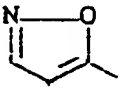
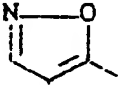
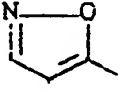
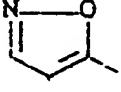
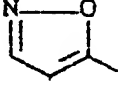
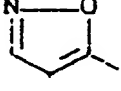
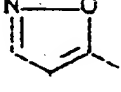
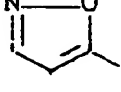
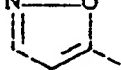
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 868 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 869 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 870 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 871 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |
| 872 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 873 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 874 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 875 |  | - | 0 | SCH ₃ | - | - |
| 876 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 877 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

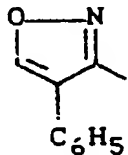
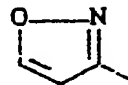

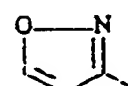
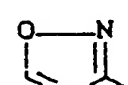
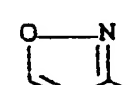
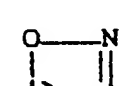
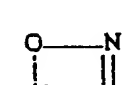
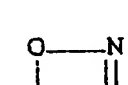
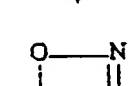
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 858 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 859 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 860 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | - |
| 861 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |
| 862 |  | - | 0 | F | - | - |
| 863 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 864 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 865 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 866 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 867 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H ₇ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

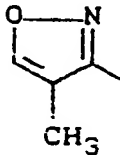
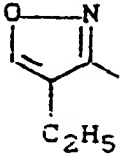
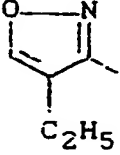
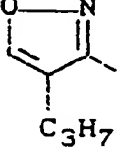
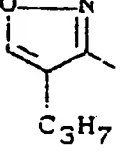
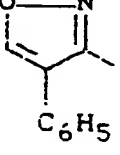
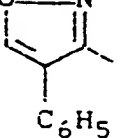
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion- R ³) | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|-------------------------------------|---------------------------|
| 851 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 852 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 853 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 854 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 855 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 856 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 857 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

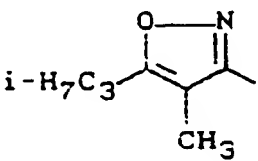
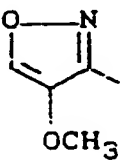
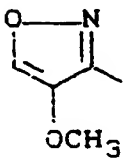
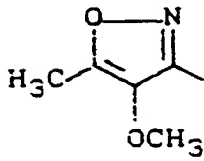
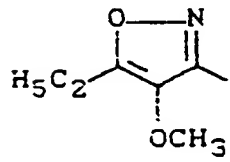
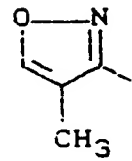
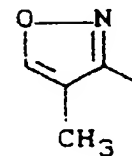
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|---|
| 844 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 845 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 846 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 847 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 848 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 849 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 850 |  | - | 0 | Br | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

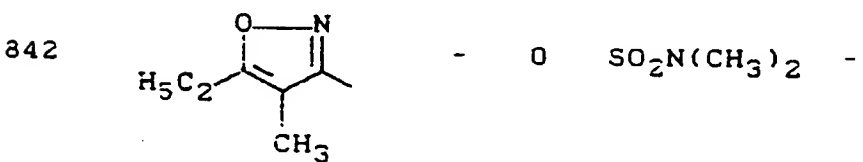


Tabelle 1 - Fortsetzung

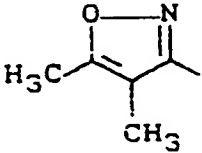
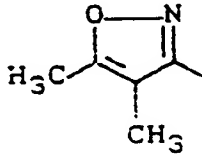
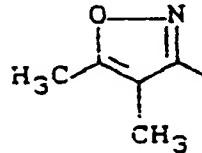
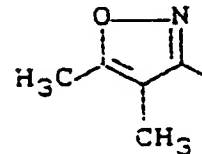
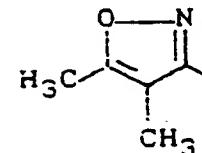
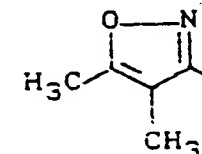
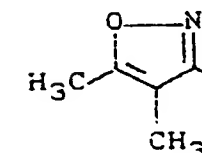
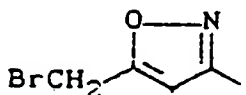
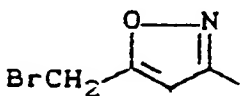
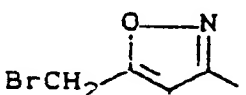
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 830 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 631 |  | - | 0 | Cl | - | - |
| 632 |  | - | 0 | Cl | (6)-Cl | - |
| 833 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 834 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 835 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 836 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |

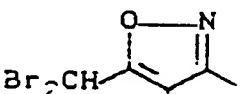
Tabelle 1 - Fortsetzung

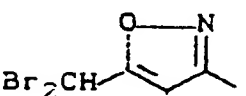
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|--|
| 820 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
|-----|---|---|---|---|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|----|---|--|
| 821 |  | - | 0 | Cl | - | |
|-----|---|---|---|----|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|--|
| 822 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|--|
| 823 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|--|
| 824 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
|-----|---|---|---|---|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|--|
| 825 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|-------------------------------|---|--|
| 826 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | |
|-----|---|---|---|-------------------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|--|
| 827 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|--|
| 828 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
|-----|---|---|---|--------------------------------|---|--|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|--|
| 829 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
|-----|---|---|---|---------------------------------|---|--|

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

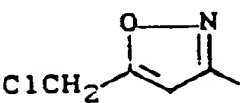
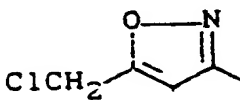
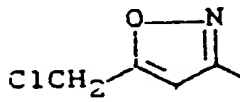
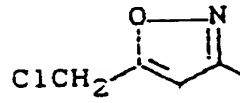
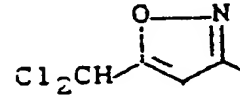
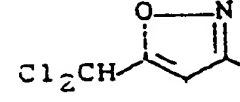
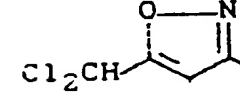
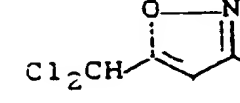
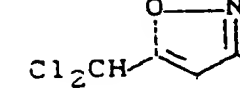
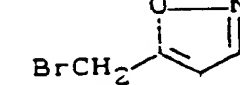
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|---|---|
| 810 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 811 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 812 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 813 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 814 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 815 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 816 |  | - | 0 | SO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 817 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 818 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 819 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

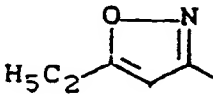
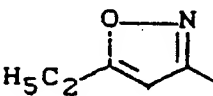
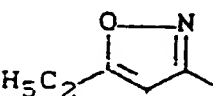
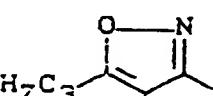
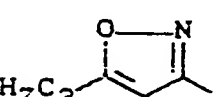
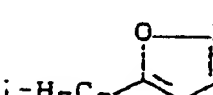
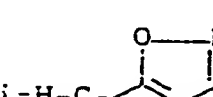
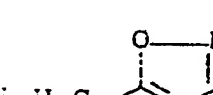
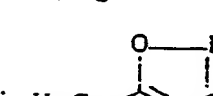
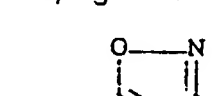
| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|---|---|---|--|------------------------------------|---------------------------|
| 800 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 801 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 802 |  | - | 0 | Cl | (6)-CH ₃ | - |
| 803 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 804 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 805 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 806 |  | - | 0 | SO ₂ CH ₃ | - | - |
| 807 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 808 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 809 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

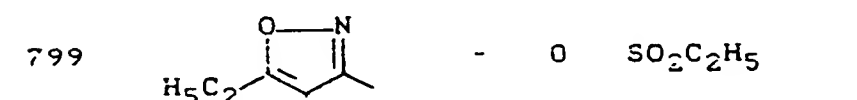
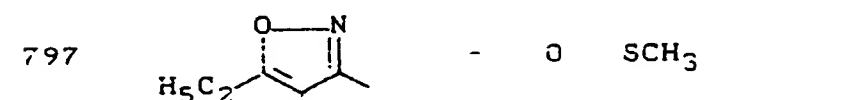
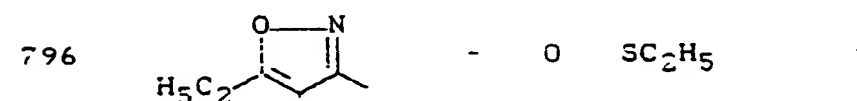
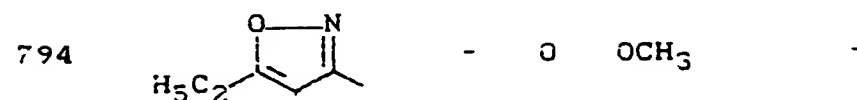
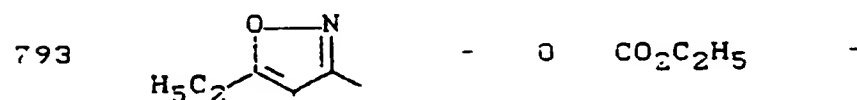
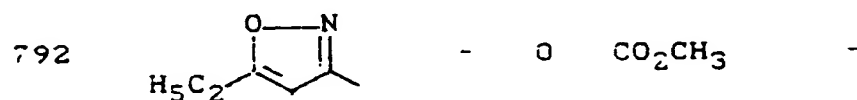


Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

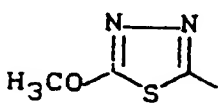
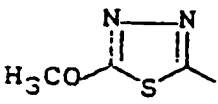
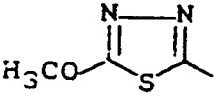
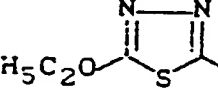
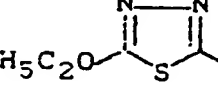
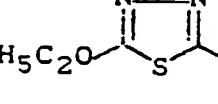
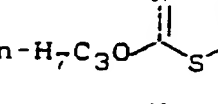
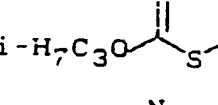
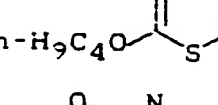
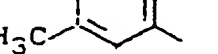
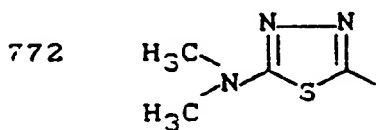
| | | | | | | |
|-----|---|---|---|---|--------|--|
| 780 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | |
| 781 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | |
| 782 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | |
| 783 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 784 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (5)-Cl | |
| 785 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | |
| 786 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 787 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 788 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | |
| 789 |  | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

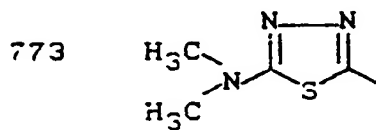


-

0

CO₂CH₃

-

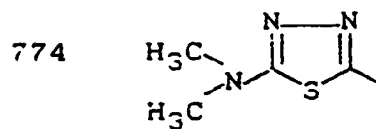


-

0

CO₂C₂H₅

-

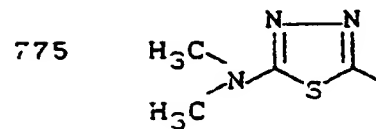


-

0

OC₂H₅

-

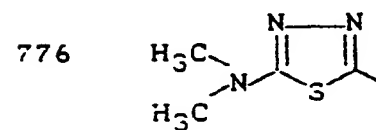


-

0

SC₂H₅

-

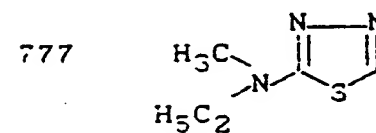


-

0

SO₂C₃H₇

-

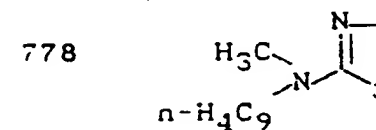


-

0

CO₂CH₃

-

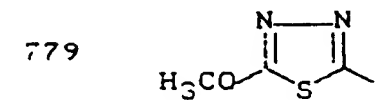


-

0

CO₂CH₃

-



-

0

CO₂CH₃

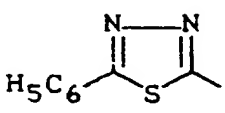
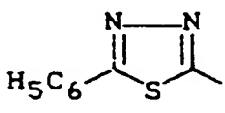
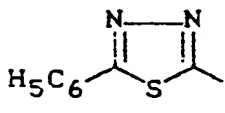
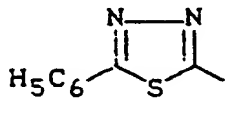
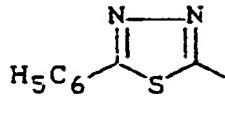
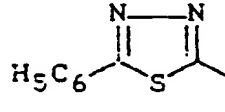
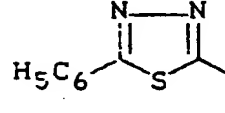
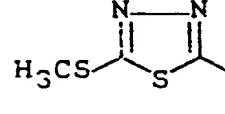
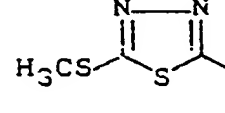
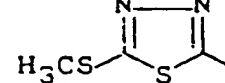
-

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- tion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|-----------------|---|---|------------------------------------|---------------------------|
| 762 | | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 763 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 764 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 765 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 766 | | - | 0 | CO ₂ C ₂ H ₅ | - | - |
| 767 | | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 768 | | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 769 | | CH ₂ | 1 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 770 | | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 771 | | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |

Tabelle 1 - Fortsetzung

| Bsp.- Nr. | R ¹ | A | n | R ² | (Posi- lion-) R ³ | Schmelz- punkt (°C) |
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|
|--------------|----------------|---|---|----------------|------------------------------------|---------------------------|

| | | | | | | |
|-----|---|---|---|--|--------|---|
| 752 |  | - | 0 | OCF ₃ | - | - |
| 753 |  | - | 0 | OCH ₃ | - | - |
| 754 |  | - | 0 | OC ₂ H ₅ | - | - |
| 755 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |
| 756 |  | - | 0 | SO ₂ C ₃ H _{7-n} | - | - |
| 757 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | (6)-Cl | - |
| 758 |  | - | 0 | C ₆ H ₅ | - | - |
| 759 |  | - | 0 | CO ₂ CH ₃ | - | - |
| 760 |  | - | 0 | SO ₂ N(CH ₃) ₂ | - | - |
| 761 |  | - | 0 | SC ₂ H ₅ | - | - |